

### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

(43) 国際公開日 2004年11月4日(04.11.2004)

**PCT** 

(10) 国際公開番号 WO 2004/095889 A1

(51) 国際特許分類7:

H05B 33/22

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2004/005603

(22) 国際出願日:

2004年4月20日(20.04.2004)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

2003 年4 月23 日 (23.04.2003) 特願2003-117886 特願2004-15487 2004年1月23日(23.01.2004) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): コニ カミノルタホールディングス株式会社 (KONICA MINOLTA HOLDINGS, INC.) [JP/JP]; 〒100-0005 東 ·京都 千代田区 丸の内 1 丁目 6 番 1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

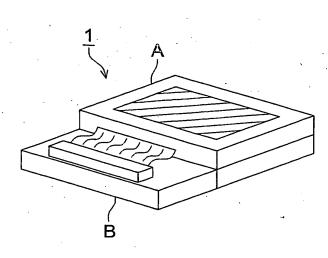
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 硯里 善幸

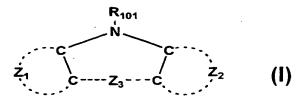
(SUZURI, Yoshiyuki) [JP/JP]; 〒191-8511 東京都 日野 市 さくら町 1番地 コニカミノルタテクノロジーセ ンター株式会社内 Tokyo (JP). 北 弘志 (KITA, Hiroshi) [JP/JP]、〒191-8511 東京都 日野市 さくら町 1番地 コニカミノルタテクノロジー センター株式会社 内 Tokyo (JP). 加藤 栄作 (KATOH, Eisaku) [JP/JP]; 〒 191-8511 東京都 日野市 さくら町 1番地 コニカミ ノルタテクノロジー センター株式会社内 Tokyo (JP). 押山 智寛 (OSHIYAMA, Tomohiro) [JP/JP]; 〒 191-8511 東京都 日野市 さくら町 1 番地 コニカミノ ルタテクノロジー センター株式会社内 Tokyo (JP). 福田 光弘 (FUKUDA, Mitsuhiro) [KR/JP]; 〒191-8511 東京都 日野市 さくら町1番地 コニカミノルタテ クノロジーセンター株式会社内 Tokyo (JP). 植田 則 子 (UEDA, Noriko) [JP/JP]; 〒191-8511 東京都 日野市 さくら町1番地 コニカミノルタテクノロジー セン ター株式会社内 Tokyo (JP).

/続葉有/

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE AND DISPLAY

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子及び表示装置





(57) Abstract: An organic electroluminescent device and a display are disclosed which have high luminous efficiency and long life. This organic electroluminescent device is characterized by comprising composition layers between a pair of electrodes which composition layers include at least a phosphorescent light-emitting layer and at least one layer of which composition layers contains a compound represented by the following general formula (1): (wherein Z<sub>1</sub> represents an aromatic heterocyclic ring which may have a substituent; Z2 represents an aromatic heterocyclic ring or an aromatic hydrocarbon ring which may have a substituent; Z<sub>3</sub> represents a divalent linking group or just a bonding hand; and R<sub>101</sub> represents a hydrogen atom or a substituent).

- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG,

KZ, MD, RU, TJ, TM),  $\exists \neg \neg \neg \lor \land (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).$ 

#### 添付公開書類:

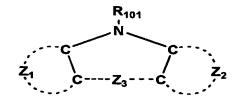
- 一 国際調査報告書
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受 領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

#### (57) 要約:

本発明は、発光効率が高く、長寿命となる有機エレクトロルミネッセンス素子及び表示装置に関するものである。この有機エレクトロルミネッセンス素子は、一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする。

#### 一般式(1)



〔式中、Z₁は置換基を有していてもよい芳香族複素環を表し、Z₂は置換基を有していてもよい芳香族複素環、または芳香族炭化水素環を表し、Z₃は2価の連結基または単なる結合手を表す。R₁₀₁は水素原子または置換基を表す。〕

1

#### 明細書

## 有機エレクトロルミネッセンス素子及び表示装置

#### 5 技術分野

本発明は、発光効率が高く、長寿命となる有機エレクトロルミネッセンス素 子及び表示装置に関する。

#### 背景技術

10 従来、発光型の電子ディスプレイデバイスとして、エレクトロルミネッセンスディスプレイ(ELD)がある。ELDの構成要素としては、無機エレクトロルミネッセンス素子や有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、有機EL素子ともいう)が挙げられる。

無機エレクトロルミネッセンス素子は平面型光源として使用されてきたが、 15 発光素子を駆動させるためには交流の高電圧が必要である。

一方、有機EL素子は、発光する化合物を含有する発光層を、陰極と陽極で挟んだ構成を有し、発光層に電子及び正孔を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子であり、数V~数十V程度の電圧で発20光が可能であり、更に、自己発光型であるために視野角に富み、視認性が高く、薄膜型の完全固体素子であるために省スペース、携帯性等の観点から注目されている。

今後の実用化に向けた有機EL素子の開発としては、更に低消費電力で効率

よく高輝度に発光する有機EL素子が望まれているわけであり、例えば、スチルベン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体またはトリススチリルアリーレン誘導体に、微量の蛍光体をドープし、発光輝度の向上、素子の長寿命化を達成する技術(特許文献1参照。)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホ5スト化合物として、これに微量の蛍光体をドープした有機発光層を有する素子(特許文献2参照。)、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体をホスト化合物として、これにキナクリドン系色素をドープした有機発光層を有する素子(特許文献3参照。)等が知られている。

上記特許文献に開示されている技術では、励起一重項からの発光を用いる場 10 合、一重項励起子と三重項励起子の生成比が1:3であるため発光性励起種の 生成確率が25%であることと、光の取り出し効率が約20%であるため、外 部取り出し量子効率(η e x t)の限界は5%とされている。

ところが、プリンストン大より、励起三重項からの燐光発光を用いる有機E L素子の報告(非特許文献1参照。)がされて以来、室温で燐光を示す材料の研 15 究が活発になってきている(非特許文献2及び特許文献4参照。)。

励起三重項を使用すると、内部量子効率の上限が100%となるため、励起 一重項の場合に比べて原理的に発光効率が4倍となり、冷陰極管とほぼ同等の 性能が得られ照明用にも応用可能であり注目されている。例えば、多くの化合 物がイリジウム錯体系等重金属錯体を中心に合成検討がなされている(非特許 20 文献3参照。)。

また、ドーパントとして、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウムを用いた検討がなされている(非特許文献2参照。)。

その他、ドーパントとしてL2Ir (acac)、例えば (ppy)2Ir (a

cac)(非特許文献 4 参照。)を、また、ドーパントとして、トリス(2 - (p-トリル)ピリジン)イリジウム( $Ir(ptpy)_3$ )、トリス(ベンゾ [h] キノリン)イリジウム( $Ir(bzq)_3$ )、 $Ir(bzq)_2$ C1P(Bu) 3等を用いた検討(非特許文献 5 参照。)が行われている。

5 また、高い発光効率を得るために、ホール輸送性の化合物を燐光性化合物の ホストとして用いている(非特許文献 6 参照。)。

また、各種電子輸送性材料を燐光性化合物のホストとして、これらに新規なイリジウム錯体をドープして用いている(非特許文献4参照)。更に、ホールブロック層の導入により高い発光効率を得ている(非特許文献5参照。)。

10 また、含窒素芳香族環化合物の部分構造を含み、窒素原子もしくはアリールを中心として、3方向または4方向に延びる化学構造であって、熱的に安定な正孔輸送材料が開示されている(特許文献5参照。)。しかしながら、特許文献5においては、燐光発光の有機EL素子の開示は一切なされていない。

また、含窒素芳香族環化合物であって、輝度が高い発光材料が開示されてい 15 る(特許文献6参照。)。しかしながら、特許文献6においては、燐光発光の有 機EL素子の開示は一切なされていない。

現在、この燐光発光を用いた有機EL素子の更なる発光の高効率化、長寿命 化が検討されているが、緑色発光については理論限界である20%近くの外部 取り出し効率が達成されているものの、低電流領域(低輝度領域)のみであり、

20 高電流領域(高輝度領域)では、いまだ理論限界は達成されていない。更に、 その他の発光色についてもまだ十分な効率が得られておらず改良が必要であ り、また、今後の実用化に向けた有機EL素子では、更に、低消費電力で効率 よく高輝度に発光する有機EL素子の開発が望まれている。特に青色燐光発光 の有機EL素子において高効率に発光する素子が求められている。

従って、本発明で解決しようとする課題は、発光効率が高い有機エレクトロルミネッセンス素子及び表示装置を提供することである。更に、長寿命となる 有機エレクトロルミネッセンス素子及び表示装置を提供することである。

5

#### (特許文献1)

特許第3093796号公報

(特許文献2)

特開昭63-264692号公報

10 (特許文献3)

特開平3-255190号公報

(特許文献4)

米国特許第6,097,147号明細書

(特許文献5)

15 特公平7-110940号公報

(特許文献6)

特開2001-160488号公報

(非特許文献1)

M. A. Baldo et al., nature、395巻、15 20 1-154ページ(1998年)

(非特許文献2)

M. A. Baldo et al., nature、403巻、17号、750-753ページ(2000年)

### (非特許文献3)

S. Lamansky et al., J. Am. Chem. Soc., 123巻、4304ページ (2001年)

#### (非特許文献4)

M. E. Tompson et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence(EL'00、

#### (非特許文献5)

Moon—Jae Youn. Og, Tetsuo Tsutsu
i et al.,The 10th International Work
shop on Inorganic and Organic Elect
roluminescence(EL'00、浜松)

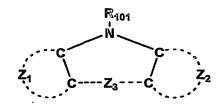
## (非特許文献6)

I kai et al., The 10th International Workshop on Inorganic and Organic Electroluminescence (EL'00、浜松)

#### 発明の開示

- 20 本発明の上記目的は、下記の各々の構成により達成される。
  - (1) 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 一般式(1)



5

〔式中、Z₁は置換基を有していてもよい芳香族複素環を表し、Z₂は置換基を有していてもよい芳香族複素環、または芳香族炭化水素環を表し、Z₃は2価の連結基または単なる結合手を表す。R₁₀₁は水素原子または置換基を表す。〕

- (2) 前記一般式(1)で表される化合物の $Z_1$ が、6 員環であることを特徴 10 とする(1)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (3) 前記一般式(1)で表される化合物の $Z_2$ が、6員環であることを特徴とする(1)または(2)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (4) 前記一般式(1)で表される化合物の Z₃が、結合手であることを特徴とする(1)~(3)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス15 素子。
  - (5) 前記一般式(1)で表される化合物が、分子量450以上であることを特徴とする(1)~(4)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (6) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-1)で表さ20 れることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

7

### 一般式(1-1)

5

[式中、R501~R507は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

(7)、前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-2)で表されることを特徴とする $(1)\sim(5)$ のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 10 一般式(1-2)

15 〔式中、R 511~R 517は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。〕

(8) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-3)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(1-3)

20

[式中、R521~R527は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

(9) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-4)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 5 一般式(1-4)

10 「式中、R 5 3 1 ~ R 5 3 7 は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。〕

(10) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-5)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 一般式(1-5)

[式中、R541~R548は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

20 (11) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-6)で表 されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。

## 一般式(1-6)

5

[式中、 $R_{551}\sim R_{558}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。] (12) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-7)で表 されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 10 一般式(1-7)

15 〔式中、R 5 6 1 ~ R 5 6 7 は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。〕

(13) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-8)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(1-8)

20

[式中、R571~R577は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

(14) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-9)で表されることを特徴とする $(1)\sim(5)$ のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 5 一般式(1-9)

- 10 〔式中、Rは、水素原子または置換基を表す。また、複数のRは、各々同一で もよく、異なっていてもよい。〕
  - (15) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-10)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 15 一般式(1-10)

- 20 〔式中、Rは、水素原子または置換基を表す。また、複数のRは、各々同一で もよく、異なっていてもよい。〕
  - (16) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(2-1)~(2 -8)のいずれかで表される基を少なくとも一つ有することを特徴とする(1)

~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

[一般式(2-1)において、R<sub>502</sub>~R<sub>507</sub>は、各々独立に、水素原子または
 20 置換基を表し、一般式(2-2)において、R<sub>512</sub>~R<sub>517</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-3)において、R<sub>522</sub>~R<sub>527</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。一般式(2-4)において、R<sub>532</sub>~R<sub>537</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-5)において

て、R<sub>542</sub>~R<sub>548</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-6)において、R<sub>552</sub>~R<sub>558</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-7)において、R<sub>562</sub>~R<sub>567</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-8)において、R<sub>572</sub>~R<sub>577</sub>は、各々独立に、水素5原子または置換基を表す。〕

(17) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(3)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(3)

〔式中、 $R_{601}\sim R_{606}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{60}$   $15_1\sim R_{606}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

(18) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(4)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 20 一般式(4)

〔式中、 $R_{611}$ ~ $R_{620}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{61}$  $_1$ ~ $R_{620}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

(19) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(5)で表され 5 ることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロル ミネッセンス素子。

## 一般式(5)

10

〔式中、R $_{621}$ ~R $_{623}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、R $_{62}$  $_{1}$ ~R $_{623}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

15 (20) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(6)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(6)

5

〔式中、 $R_{631}\sim R_{645}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{63}$   $10_1\sim R_{645}$  の少なくとも一つは前記一般式(2-1) $\sim$ (2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

(21) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(7)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 15 一般式(7)

$$(R_{651})_{na}$$
 $R_{656}$ 
 $R_{655}$ 
 $R_{654}$ 
 $R_{663}$ 

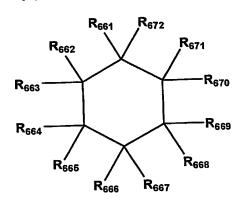
20

〔式中、 $R_{65}$ 1~ $R_{656}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{65}$ 1~ $R_{656}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。n a は 0 ~ 5 の整数を表し、n b は

1~6の整数を表すが、naとnbの和は6である。〕

(22) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(8)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 5 一般式(8)



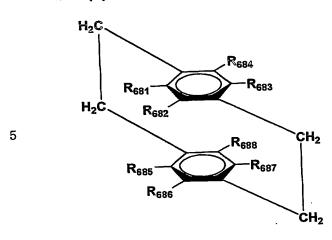
10

〔式中、 $R_{661}\sim R_{672}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{66}$  $_1\sim R_{672}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1) $\sim$ (2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

15 (23) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(9)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

 $\tilde{\nu}=\varrho$ 

一般式(9)



〔式中、 $R_{681}\sim R_{688}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{68}$   $10_1\sim R_{688}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1) $\sim$ (2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

(24) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(10)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 15 一般式(10)

- 20 〔式中、 $R_{691}\sim R_{700}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $L_1$ は 2 価の連結基を表す。 $R_{691}\sim R_{700}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)  $\sim (2-4)$  で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕
  - (25) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(11)で表さ

れることを特徴とする (1)  $\sim$  (5) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(11)

(26) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(12)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロ15ルミネッセンス素子。

## 一般式(12)

〔式中、Rı、Rıは、各々独立に、水素原子または置換基を表す。n、mは、

各々 $1\sim2$ の整数を表し、k、1は、各々 $3\sim4$ の整数を表す。但し、n+k = 5、且つ、1+m=5である。〕

(27) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(13)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロ 5 ルミネッセンス素子。

### 一般式(13)

$$\begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{n}} \begin{pmatrix} \mathbf{R}_{2} \end{pmatrix}_{\mathbf{I}} \begin{pmatrix} \mathbf{R}_{2} \end{pmatrix}_{\mathbf{I}} \begin{pmatrix} \mathbf{R}_{2} \end{pmatrix}_{\mathbf{N}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} & \mathbf{N} \end{pmatrix}_{\mathbf{m}} \begin{pmatrix} \mathbf{N} & \mathbf{N} \\ \mathbf{N} &$$

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。 n 、 mは、 各々 $1\sim2$ の整数を表し、 k、 l は、各々 $3\sim4$  の整数を表す。但し、 n+k 15 = 5、且つ、l+m=5 である。〕

(28) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(14)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 一般式(14)

$$\begin{pmatrix}
N \\
N
\end{pmatrix}_{n}$$

$$\begin{pmatrix}
R_{1} \\
k
\end{pmatrix}_{k}$$

$$\begin{pmatrix}
N \\
N
\end{pmatrix}_{m}$$

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。 n 、 mは、 各々  $1\sim 2$  の整数を表し、 k 、 1 は、各々  $3\sim 4$  の整数を表す。但し、 n+k 10=5、且つ、 1+m=5 である。〕

(29) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(15)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(15)

15

$$\begin{pmatrix} \dot{z}_1 & \ddot{z}_2 \\ & \ddot{z}_2 \\ & \ddot{z}_3 & \ddot{z}_4 \end{pmatrix}_{\text{m}}$$

20

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。n、mは、各々1~2の整数を表し、k、lは、各々3~4の整数を表す。但し、n+k=5、且つ、l+m=5である。 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ は、各々窒素原子を少な

くとも一つ含む6員の芳香族複素環を表す。〕

(30) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(16)で表されることを特徴とする(1) $\sim$ (5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 5 一般式(16)

〔式中、o、pは、各々 $1\sim3$ の整数を表し、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。 $Z_1$ 、 $Z_2$ は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、Lは、2価の連結基を表す。〕

15 (31) 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(17)で表されることを特徴とする(1)~(5)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(17)

· 5

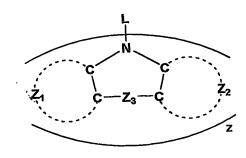
〔式中、o、pは、各々1~3の整数を表し、Ari、Ar₂は、各々2価のアリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。Zi、Z₂、Z₃、Z₄は、各々10窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、Lは、2価の連結基を表す。〕

- (32) 前記燐光性発光層が、前記一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする(1) $\sim$ (31)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 15 (33) 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする(1)~(32)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (34) 青色に発光することを特徴とする(1) $\sim$ (33)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 (35) 白色に発光することを特徴とする(1) $\sim$ (33)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (36) (1)~(35)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

(37) 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1-11)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(1-11)

5



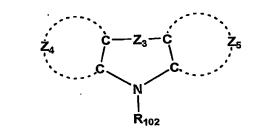
- 10 〔式中、Z₁は置換基を有していてもよい芳香族複素環を表し、Z₂は置換基を有していてもよい芳香族複素環、または芳香族炭化水素環を表し、Z₃は2価の連結基または単なる結合手を表す。Lは2価の連結基を表す。Lで連結される2つの基はそれぞれ同じでも異なっていても良い。〕
- (38) 前記一般式(1-11)で表される化合物の $Z_1$ が、6員環であるこ 15とを特徴とする(37)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (39) 前記一般式 (1-11) で表される化合物の $Z_2$ が、6員環であることを特徴とする (37) または (38) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (40) 前記一般式(1-11)で表される化合物の $Z_3$ が、結合手であるこ 20 とを特徴とする(37)~(39)のいずれか1項に記載の有機エレクトロル ミネッセンス素子。
  - (41) 前記一般式(1-11)で表される化合物が、分子量450以上であることを特徴とする $(37)\sim(40)$ のいずれか1項に記載の有機エレク

トロルミネッセンス素子。

- (42) 前記燐光性発光層が、前記一般式(1-11)で表される化合物を含有することを特徴とする $(37)\sim(41)$ のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 5 (43) 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1-11)で表される化合物を含有することを特徴とする(37)~(42)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。(44) 青色に発光することを特徴とする(37)~(43)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 10 (45) 白色に発光することを特徴とする(37)~(43)のいずれか1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (46) (37)~(45)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
- (47) 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前 15 記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1-12)で表される化合物 を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 一般式(1-12)

20



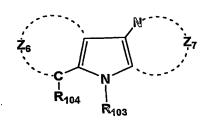
〔式中、R102は置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していても 良いシクロアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、または置換基



を有していても良い複素環基を表す。 Z<sub>4</sub>、 Z<sub>5</sub>は、各々独立に、5~7員の含窒素複素環構造を形成するのに必要な原子群を表す。Z<sub>3</sub>は2価の連結基または単なる結合手を表す。〕

- (48) 前記一般式(1-12)で表される化合物の $Z_3$ が、結合手であるこ 5 とを特徴とする(47)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (49) 前記一般式 (1-12) で表される化合物が、分子量450以上であることを特徴とする (47) または (48) に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (50) 前記燐光性発光層が、前記一般式(1-12)で表される化合物を 10 含有することを特徴とする(47)~(49)のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (51) 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1-12)で表される化合物を含有することを特徴とする $(47)\sim(50)$ のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 15 (52) 青色に発光することを特徴とする(47) $\sim$ (51)のいずれか1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (53) 白色に発光することを特徴とする(47) $\sim$ (51)のいずれか1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (54) (47)~(53)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネ 20 ッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
  - (55) 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1-13)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1-13)



5

〔式中、R103は置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していても良いシクロアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、または置換基を有していても良い複素環基を表す。R104は水素原子または置換基を表す。Z6、Z7は各々5~7員の環構造を形成するのに必要な原子群を表す。〕

- 10 (56) 前記一般式(1-13)で表される化合物の Z oが、6 員環であることを特徴とする(55)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - (57) 前記一般式(1-13)で表される化合物の $Z_7$ が、6員環であることを特徴とする(55)または(56)に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 15 (58) 前記一般式(1-13)で表される化合物が、分子量450以上であることを特徴とする(55)~(57)のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (59) 前記燐光性発光層が、前記一般式(1-13)で表される化合物を 含有することを特徴とする(55)~(58)のいずれか1項に記載の有機エ 20 レクトロルミネッセンス素子。
  - (60) 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1-13)で表される化合物を含有することを特徴とする(5)  $\sim$  (59) のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



- (61) 青色に発光することを特徴とする(55)  $\sim$  (60) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- (62) 白色に発光することを特徴とする(55)  $\sim$  (60) のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- $5(63)(55)\sim(62)$ のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。

## 図面の簡単な説明

WO 2004/095889

第1図は有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図であ 10 る。

第2図は表示部の模式図である。

第3図は画素の模式図である。

第4図は、パッシブマトリクス方式フルカラー表示装置の模式図である。

# 15 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る各構成要素の詳細について、順次説明する。

《有機EL素子用材料》

本発明に係る各化合物について説明する。

《一般式(1)で表される化合物》

20 本発明に係る一般式(1)で表される化合物について説明する。

本発明者等は、鋭意検討の結果、前記一般式(1)で表される化合物を用いた有機EL素子は、発光効率が高くなることを見出した。更に、前記一般式(1)で表される化合物を用いた有機EL素子は、長寿命となることを見出し

た。

前記一般式(1)において、Z<sub>1</sub>は置換基を有してもよい芳香族複素環を表し、 Z<sub>2</sub>は置換基を有してもよい芳香族複素環、もしくは芳香族炭化水素環を表し、 Z<sub>3</sub>は2価の連結基、もしくは単なる結合手を表す。R<sub>101</sub>は水素原子、もしく 5 は置換基を表す。

前記一般式(1)において、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>で表される芳香族複素環としては、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾ10イミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キノキサリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、カルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子が更に窒素原子で置換されている環等が挙げられる。更に、前記芳香族複素環は、後述するR<sub>101</sub>で表される置換基を有してもよい。

- 15 前記一般式(1)において、Z₂で表される芳香族炭化水素環としては、ベンゼン環、ビフェニル環、ナフタレン環、アズレン環、アントラセン環、フェナントレン環、ピレン環、クリセン環、ナフタセン環、トリフェニレン環、ローテルフェニル環、mーテルフェニル環、pーテルフェニル環、アセナフテン環、コロネン環、フルオレン環、フルオラントレン環、ナフタセン環、ペンタセンでは、ペリレン環、ペンタフェン環、ピセン環、ピレン環、ピラントレン環、アンスラアントレン環等が挙げられる。更に、前記芳香族炭化水素環は、後述するR101で表される置換基を有してもよい。
  - 一般式(1)において、R101で表される置換基としては、アルキル基(例え

WO 2004/095889

ば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、tertーブチル基、 ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデ シル基、ペンタデシル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロペンチル基、 シクロヘキシル基等)、アルケニル基(例えば、ビニル基、アリル基等)、アル 5 キニル基 (例えば、エチニル基、プロパルギル基等)、アリール基 (例えば、フ ・ ェニル基、ナフチル基等)、芳香族複素環基(例えば、フリル基、チエニル基、 ピリジル基、ピリダジニル基、ピリミジニル基、ピラジニル基、トリアジニル 基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、チアゾリル基、キナゾリニル基、フタラ ジニル基等)、複素環基(例えば、ピロリジル基、イミダゾリジル基、モルホリ 10 ル基、オキサゾリジル基等)、アルコキシル基(例えば、メトキシ基、エトキシ 基、プロピルオキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、オクチルオキ シ基、ドデシルオキシ基等)、シクロアルコキシル基(例えば、シクロペンチル オキシ基、シクロヘキシルオキシ基等)、アリールオキシ基(例えば、フェノキ シ基、ナフチルオキシ基等)、アルキルチオ基(例えば、メチルチオ基、エチル 15 チオ基、プロピルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、 ドデシルチオ基等)、シクロアルキルチオ基(例えば、シクロペンチルチオ基、 シクロヘキシルチオ基等)、アリールチオ基(例えば、フェニルチオ基、ナフチ ルチオ基等)、アルコキシカルボニル基(例えば、メチルオキシカルボニル基、 エチルオキシカルボニル基、ブチルオキシカルボニル基、オクチルオキシカル 20 ボニル基、ドデシルオキシカルボニル基等)、アリールオキシカルボニル基(例 えば、フェニルオキシカルボニル基、ナフチルオキシカルボニル基等)、スルフ ァモイル基(例えば、アミノスルホニル基、メチルアミノスルホニル基、ジメ チルアミノスルホニル基、ブチルアミノスルホニル基、ヘキシルアミノスルホ

ニル基、シクロヘキシルアミノスルホニル基、オクチルアミノスルホニル基、 ドデシルアミノスルホニル基、フェニルアミノスルホニル基、ナフチルアミノ スルホニル基、2-ピリジルアミノスルホニル基等)、アシル基(例えば、アセ チル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、 5 シクロヘキシルカルボニル基、オクチルカルボニル基、2-エチルヘキシルカ ルボニル基、ドデシルカルボニル基、フェニルカルボニル基、ナフチルカルボ ニル基、ピリジルカルボニル基等)、アシルオキシ基(例えば、アセチルオキシ 基、エチルカルボニルオキシ基、ブチルカルボニルオキシ基、オクチルカルボ ニルオキシ基、ドデシルカルボニルオキシ基、フェニルカルボニルオキシ基 10 等)、アミド基 (例えば、メチルカルボニルアミノ基、エチルカルボニルアミノ 基、ジヌチルカルボニルアミノ基、プロピルカルボニルアミノ基、ペンチルカ ルボニルアミノ基、シクロヘキシルカルボニルアミノ基、2-エチルヘキシル カルボニルアミノ基、オクチルカルボニルアミノ基、ドデシルカルボニルアミ ノ基、フェニルカルボニルアミノ基、ナフチルカルボニルアミノ基等)、カルバ 15 モイル基(例えば、アミノカルボニル基、メチルアミノカルボニル基、ジメチ ルアミノカルボニル基、プロピルアミノカルボニル基、ペンチルアミノカルボ ニル基、シクロヘキシルアミノカルボニル基、オクチルアミノカルボニル基、 2-エチルヘキシルアミノカルボニル基、ドデシルアミノカルボニル基、フェ ニルアミノカルボニル基、ナフチルアミノカルボニル基、2-ピリジルアミノ 20 カルボニル基等)、ウレイド基(例えば、メチルウレイド基、エチルウレイド基、 ペンチルウレイド基、シクロヘキシルウレイド基、オクチルウレイド基、ドデ シルウレイド基、フェニルウレイド基ナフチルウレイド基、2-ピリジルアミ ノウレイド基等)、スルフィニル基 ( 例えば、メチルスルフィニル基、エチルス WO 2004/095889

ルフィニル基、ブチルスルフィニル基、シクロヘキシルスルフィニル基、2ーエチルヘキシルスルフィニル基、ドデシルスルフィニル基、フェニルスルフィニル基、ナフチルスルフィニル基、2ーピリジルスルフィニル基等)、アルキルスルホニル基 (例えば、メチルスルホニル基、エチルスルホニル基、ブチルス5ルホニル基、シクロヘキシルスルホニル基、2ーエチルヘキシルスルホニル基、ドデシルスルホニル基等)、アリールスルホニル基(フェニルスルホニル基、ナフチルスルホニル基、2ーピリジルスルホニル基等)、アミノ基(例えば、アミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ブチルアミノ基、シクロペンチルアミノ基、2ーエチルヘキシルアミノ基、ドデシルアミノ基、アニリノ基、ナコのフチルアミノ基、2ーピリジルアミノ基等)、ハロゲン原子(例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等)、フッ化炭化水素基(例えば、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ペンタフルオロフェニル基等)、シアノ基、ニトロ基、ヒドロキシ基、メルカプト基、シリル基(例えば、トリメチルシリル基、トリイソプロビルシリル基、トリフェニルシリル基、フコ5ェニルジエチルシリル基等)、等が挙げられる。

これらの置換基は、上記の置換基によって更に置換されていてもよい。また、 これらの置換基は複数が互いに結合して環を形成していてもよい。

好ましい置換基としては、アルキル基、シクロアルキル基、フッ化炭化水素 基、アリール基、芳香族複素環基である。

20 2価の連結基としては、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレンなどの炭化水素基のほか、ヘテロ原子を含むものであってもよく、また、チオフェン-2、5-ジイル基や、ピラジン-2、3-ジイル基のような、芳香族複素環を有する化合物(ヘテロ芳香族化合物ともいう)に由来する2価の

連結基であってもよいし、酸素や硫黄などのカルコゲン原子であってもよい。 また、アルキルイミノ基、ジアルキルシランジイル基やジアリールゲルマンジ イル基のような、ヘテロ原子を会して連結する基でもよい。

単なる結合手とは、連結する置換基同士を直接結合する結合手である。

5 本発明においては、前記一般式(1)のZ<sub>1</sub>が6員環であることが好ましい。 これにより、より発光効率を高くすることができる。更に、より一層長寿命化 させることができる。

また、本発明においては、前記一般式(1)のZ₂が6員環であることが好ま しい。これにより、より発光効率を高くすることができる。更に、より一層長 10寿命化させることができる。

更に、前記一般式(1)のZ<sub>1</sub>とZ<sub>2</sub>を共に6員環とすることで、より一層発 光効率と高くすることができるので好ましい。更に、より一層長寿命化させる ことができるので好ましい。

前記一般式(1)で表される化合物で好ましいのは、前記一般式(1-1) 15  $\sim$  (1-13)で各々表される化合物である。

前記一般式(1-1)において、 $R_{501}$ ~ $R_{507}$ は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。

前記一般式(1-1)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とする
20 ことができる。

前記一般式(1-2)において、 $R_{511}\sim R_{517}$ は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。

前記一般式(1-2)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高

い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(1-3)において、 $R_{521}\sim R_{527}$ は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。

5 前記一般式(1-3)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(1-4)において、 $R_{531}\sim R_{537}$ は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。

10 前記一般式(1-4)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(1-5)において、 $R_{541} \sim R_{548}$ は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。

前記一般式(1-5)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(1-6)において、 $R_{551} \sim R_{558}$ は、各々独立に、水素原子、もしくは置換基を表す。

20 前記一般式(1-6)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(1-7)において、R561~R567は、各々独立に、水素原子、

PCT/JP2004/005603

もしくは置換基を表す。

前記一般式(1-7)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

5 前記一般式 (1-8) において、R<sub>571</sub>~R<sub>577</sub>は、各々独立に、水素原子、 もしくは置換基を表す。

前記一般式(1-8)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

10 前記一般式 (1-9) において、Rは、水素原子、もしくは置換基を表す。 また、複数のRは、各々同一でもよく、異なっていてもよい。

前記一般式(1-9)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

15 前記一般式(1-10)において、Rは、水素原子、もしくは置換基を表す。
また、複数のRは、各々同一でもよく、異なっていてもよい。

前記一般式(1-10)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

20 前記一般式(1-11)において、 $Z_1$ は置換基を有していてもよい芳香族複素環を表し、 $Z_2$ は置換基を有していてもよい芳香族複素環、または芳香族炭化水素環を表し、 $Z_3$ は2価の連結基または単なる結合手を表す。Lは2価の連結基を表す。Lで連結される2つの基はそれぞれ同じでも異なっていても良い。

前記一般式 (1-11) で表される化合物を用いることで、より発光効率の 高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とす ることができる。

前記一般式 (1-12) において、 $R_{102}$  は置換基を有していてもよいアルキ 5 ル基、置換基を有していても良いシクロアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、または置換基を有していても良い複素環基を表す。 $Z_4$ 、 $Z_5$  は、 $Z_5$  は、 $Z_5$  は、 $Z_5$  は、 $Z_5$  は、 $Z_5$  は、 $Z_5$  は  $Z_5$  な  $Z_5$  は  $Z_5$  な  $Z_5$  は  $Z_5$  は  $Z_5$  な  $Z_5$  な

前記一般式(1-12)で表される化合物を用いることで、より発光効率の 10 高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とす ることができる。

前記一般式 (1-13)において、R103は置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していても良いシクロアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、または置換基を有していても良い複素環基を表す。R104は水素15原子または置換基を表す。Z6、Z7は各々5~7員の環構造を形成するのに必要な原子群を表す。

前記一般式(1-13)で表される化合物を用いることで、より発光効率の 高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とす ることができる。

20 ここで、前記一般式(1-1)~(1-13)の各々で表される化合物が更に有してもよい置換基は、上記一般式(1)で表される化合物において、R<sub>10</sub>1で表される置換基と同義である。

また、前記一般式(1)で表される化合物で好ましいものは、前記一般式(2

-1)  $\sim$  (2-8) のいずれかで表される基を少なくとも一つを有する化合物である。特に、分子内に前記一般式 (2-1)  $\sim$  (2-8) のいずれかで表される基を2つから4つ有することがより好ましい。このとき、前記一般式 (1) で表される構造において、 $R_{101}$ を除いた部分が、前記一般式 (2-1)  $\sim$  (25-8) に置き換わる場合を含む。

このとき、特に前記一般式(3)~(17)で表される化合物であることが本発明の効果を得る上で好ましい。

前記一般式(3)において、 $R_{601}\sim R_{606}$ は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $R_{601}\sim R_{606}$ の少なくとも一つは前記一般式 $(2-1)\sim(2-4)$ 10 のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(3)で表される化合物を用いることにより、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(4)において、 $R_{611}\sim R_{620}$ は、水素原子、もしくは置換基を 15 表すが、 $R_{611}\sim R_{620}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1) $\sim$ (2-4) のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(4)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

100 前記一般式(5)において、 $R_{621}\sim R_{623}$ は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $R_{611}\sim R_{620}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1) $\sim$ (2-4)のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(5)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有

機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(6)において、 $R_{631}\sim R_{645}$ は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $R_{631}\sim R_{645}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1) $\sim$ (2-4) のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(6)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式 (7) において、 $R_{651}\sim R_{656}$ は、水素原子、もしくは置換基を 10 表すが、 $R_{651}\sim R_{656}$ の少なくとも一つは前記一般式  $(2-1)\sim (2-4)$  のいずれかで表される基を表す。 n a は  $0\sim 5$  の整数を表し、 n b は  $1\sim 6$  の 整数を表すが、 n a と n b の n か n 6 である。

前記一般式(7)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(8)において、 $R_{661}\sim R_{672}$ は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $R_{661}\sim R_{672}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)  $\sim$ (2-4) のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(8)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有20機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

前記一般式(9)において、 $R_{681}\sim R_{688}$ は、水素原子、もしくは置換基を表すが、 $R_{681}\sim R_{688}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)

のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(9)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とすることができる。

5 前記一般式(10)において、R<sub>691</sub>~R<sub>700</sub>は、水素原子、もしくは置換基を表すが、R<sub>691</sub>~R<sub>700</sub>の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)のいずれかで表される基を表す。

前記一般式(10)において、L1で表される2価の連結基としては、アルキレン基(例えば、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、プロピレ10 ン基、エチルエチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、2, 2, 4 ートリメチルヘキサメチレン基、ヘブタメチレン基、オクタメチレン基、ノナメチレン基、デカメチレン基、ウンデカメチレン基、ドデカメチレン基、シクロペンチレン基(例えば、1, 6ーシクロヘキサンジイル基等)、シクロペンチレン基(例えば、1, 5ーシクロペンタンジイル基など)等)、アルケニレン基しの人は、エチニレン基、プロペニレン基等)、アルキニレン基(例えば、エチニレン基、3ーペンチニレン基等)、アリーレン基などの炭化水素基のほか、ヘテロ原子を含む基(例えば、ロー、「Sー等のカルコゲン原子を含む2価の基、「N(R)ー基、ここで、Rは、水素原子またはアルキル基を表し、該アルキル基は、前記一般式(1)において、R101で表されるアルキル基と同義である)20 等が挙げられる。

また、上記のアルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、アリーレン 基の各々においては、2価の連結基を構成する炭素原子の少なくとも一つが、 カルコゲン原子(酸素、硫黄等)や前記-N(R)-基等で置換されていても 良い。

更に、L1で表される2価の連結基としては、例えば、2価の複素環基を有す る基が用いられ、例えば、オキサゾールジイル基、ピリミジンジイル基、ピリ ダジンジイル基、ピランジイル基、ピロリンジイル基、イミダゾリンジイル基、 5 イミダゾリジンジイル基、ピラゾリジンジイル基、ピラゾリンジイル基、ピペ リジンジイル基、ピペラジンジイル基、モルホリンジイル基、キヌクリジンジ イル基等が挙げられ、また、チオフェン-2,5-ジイル基や、ピラジン-2, 3-ジイル基のような、芳香族複素環を有する化合物(ヘテロ芳香族化合物と もいう)に由来する2価の連結基であってもよい。

また、アルキルイミノ基、ジアルキルシランジイル基やジアリールゲルマン ジイル基のようなヘテロ原子を会して連結する基であってもよい。

前記一般式(10)で表される化合物を用いることで、より発光効率の高い 有機EL素子とすることができる。更に、より長寿命の有機EL素子とするこ とができる。

前記一般式(11)~一般式(15)で各々表される化合物において、R1、 R2で各々表される置換基としては、前記一般式(1)において、R101で表さ れる置換基と同時である。

前記一般式(15)において、Z1、Z2、Z3、Z4で各々表される、各々窒 素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環としては、例えば、ピリジン 20 環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。

前記一般式(16)において、Z1、Z2で各々表される、各々窒素原子を少 なくとも一つ含む6員の芳香族複素環としては、例えば、ピリジン環、ピリダ ジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。

前記一般式(16)において、Ari、Argで各々表されるアリーレン基としては、o-フェニレン基、m-フェニレン基、p-フェニレン基、ナフタレンジイル基、アントラセンジイル基、ナフタセンジイル基、ピレンジイル基、ナフチルナフタレンジイル基、ビフェニルジイル基(例えば、3,3'ービフェニルジイル基、3,6ービフェニルジイル基等)、テルフェニルジイル基、クアテルフェニルジイル基、キンクフェニルジイル基、セキシフェニルジイル基、セプチフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基、オクチフェニルジイル基、ノビフェニルジイル基、デシフェニルジイル基等が挙げられる。また、前記アリーレン基は更に後述する置換基を有していてもよい。

10 前記一般式(16)において、Ari、Ar2で各々表される2価の芳香族複素環基は、フラン環、チオフェン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、トリアジン環、ベンゾイミダゾール環、オキサジアゾール環、トリアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、チアゾール環、インドール環、ベンゾイミダゾール環、ベンゾチアゾール環、ベンゾオキサゾール環、キカルボリン環、キナゾリン環、フタラジン環、カルバゾール環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環、カルボリン環を構成する炭化水素環の炭素原子が更に窒素原子で置換されている環等から導出される2価の基等が挙げられる。更に、前記芳香族複素環基は、前記R101で表される置換基を有してもよい。

前記一般式(16)において、Lで表される2価の連結基としては、前記一20 般式(10)において、L1で表される2価の連結基と同義であるが、好ましくはアルキレン基、-O-、-S-等のカルコゲン原子を含む2価の基であり、もっとも好ましくはアルキレン基である。

前記一般式(17)において、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ で、各々表されるアリーレン基

は、前記一般式(16)において、 $Ar_1$ 、 $Ar_2$ で各々表されるアリーレン基と同義である。

前記一般式 (17) において、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>で各々表される芳香族複素環基は、前記一般式 (16) において、Ar<sub>1</sub>、Ar<sub>2</sub>で各々表される2価の芳香族 5 複素環基と同義である。

前記一般式(17)において、Z<sub>1</sub>、Z<sub>2</sub>、Z<sub>3</sub>、Z<sub>4</sub>で各々表される、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6員の芳香族複素環としては、例えば、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環等が挙げられる。

前記一般式(17)において、Lで表される2価の連結基としては、前記一10 般式(10)において、L1で表される2価の連結基と同義であるが、好ましくはアルキレン基、-O-、-S-等のカルコゲン原子を含む2価の基であり、もっとも好ましくはアルキレン基である。

以下に、本発明に係る化合物または、本発明に係る化合物の具体例を示すが、 本発明はこれらに限定されない。

中心骨格 化合物 1 5 2 ,CH₃ H<sub>3</sub>C 3 ι CH₃ 10 ,CH₃ H<sub>3</sub>C ĊH₃ ÇH₃ 5 H<sub>3</sub>C 15 6 20 7

A-

化合物

中心骨格

A

A 中心骨格 化合物 24 5 25 CH-CH<sub>3</sub> 26 H<sub>3</sub>C-HC CH<sub>3</sub> CH3 CH−CH3 10 27 H<sub>3</sub>C-HC CH<sub>3</sub> ÇH₃ H<sub>3</sub>C 28 15 CH₃ H₃Ć СН₃ H<sub>3</sub>C 29 CH<sub>3</sub> H₃Ć H<sub>3</sub>C 20 30 CH₃ СН₃

A 中心骨格 化合物 31 CH₃ CH₃ ÇH₃ 5 32 10 33 34 15 CH<sub>3</sub> ĊH₃ 35 20

中心骨格

A

中心骨格

A

40

5

10

41

$$\bigcup_{N}\bigvee_{N}\bigvee_{N}$$

15

43

42

中心骨格

Α

45

 $\bigcap_{N} \bigcap_{N} \bigcap_{N}$ 

5

10 47

48

$$A - CH_3 - A$$

15

$$A \longrightarrow CH_3 \longrightarrow A$$

$$\left( \begin{array}{c} N \\ \end{array} \right) \left( \begin{array}$$

50

49

$$A \longrightarrow CF_3 \longrightarrow A$$

**88** 

$$H_3C$$
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 
 $H_3C$ 
 $CH_3$ 

$$F_3C$$
 $F_3C$ 
 $F_3C$ 
 $CF_3$ 
 $F_3C$ 
 $CF_3$ 
 $F_3C$ 
 $CF_3$ 

122
$$\begin{array}{c}
N \\
N \\
N
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CH_2 \\
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
N \\
N \\
\end{array}$$
123

$$N$$
 $CH_2$ 
 $CH_2$ 
 $N$ 

125
$$\begin{array}{c}
N \\
N
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CH_2 \\
\end{array}$$

 $2-\eta$ 

131
$$N \longrightarrow CH_2 \longrightarrow CH_2 \longrightarrow N$$

144

15

CH<sub>3</sub>

 $\begin{array}{c|c}
 & CF_3 \\
 & CF_3
\end{array}$ 

**147** 

10 148

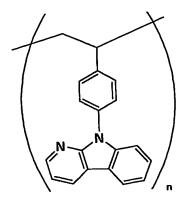
**149** 

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & \\ & & & \\ & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & \\ & & \\ & \\ & & \\ & \\ & & \\ & & \\ & \\ & & \\ & \\ & & \\ & \\ & \\ &$$

.. ..

10 162

<sup>15</sup> 164



# 

以下に、本発明に係る化合物または、本発明に係る化合物の代表的な合成例を示すが、本発明はこれらに限定されない。

《例示化合物73の合成》・

5

4、4′ -ジョードビフェニル6.87g、β-カルボリン6.00gをN、N-ジメチルアセトアミド50m1中に添加した混合液に、銅粉4.5g、炭酸カリウム7.36gを加え、15時間加熱還流した。放冷後水クロロホルムを加え、不溶物を濾去した。有機層を分離し、水、飽和食塩水で洗浄した後、減圧下に濃縮し、得られた残渣を酢酸に溶解し、活性炭処理後、再結晶して、15 例示化合物73の無色結晶4.2gを得た。

例示化合物 73の構造は  $^1$ H - N M R スペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物 73の物性データ、スペクトルデータを下記に示す。 無色結晶、融点 200  $^{\circ}$ C

 $MS (FAB) m/z : 487 (M^{+1})$ 

 $^{1}$ H-NMR(400MHz, CDC1<sub>3</sub>):  $\delta$ /ppm 7.3-7.5(m, 2H), 7.5-7.6(m, 4H), 7.7-7.8(m, 4H), 7.9-8. 0 (m, 4H), 8.06(d, J=5.1Hz, 2H), 8.24(d, J=7.8Hz, 2H), 8.56(d, J=5.1Hz, 2H), 8.96(s,

2 H)

《例示化合物74の合成》

10

酢酸パラジウム 0. 3 2 g、トリー t e r t ーブチルホスフィン1. 1 7 g を無水トルエン1 0 m 1 に溶解し、水素化ホウ素ナトリウム 5 0 m g を添加し、室温で1 0 分間攪拌した後、δーカルボリン5. 0 0 g、4,4′ージョードビフェニル5.8 7 g、ナトリウムー t e r t ーブトキシド3.4 2 gを無水15 キシレン5 0 m 1 中に分散し、窒素雰囲気下、還流温度にて1 0 時間撹拌した。得られた反応混合物を放冷後クロロホルムと水を加えて有機層を分離し、有機層を、水、飽和食塩水で洗浄した後、減圧下に濃縮し、得られた残渣をテトラヒドロフランに溶解し、活性炭処理を施した後、再結晶して例示化合物 7 4 の無色結晶 5.0 g を得た。

20 例示化合物 7 4 の構造は <sup>1</sup>H - NMRスペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物 7 4 の物性データ、スペクトルデータを下記に示す。 MS(FAB) m/z:487(M<sup>+1</sup>)

 $^{1}H-NMR$  (400MHz, CDC1<sub>3</sub>):  $\delta/ppm$  7.37 (dd, J

=4. 7Hz, J=8. 3Hz, 2H), 7. 4-7. 5 (m, 2H), 7. 5
-7. 6 (m, 4H), 7. 7-7. 8 (m, 4H), 7. 81 (dd, J=1.
2Hz, J=8. 3Hz, 2H), 7. 9-8. 0 (m, 4H), 8. 48 (d, J=7. 8Hz, 2H), 8. 65 (dd, J=1. 2Hz, J=4. 6Hz, 52H)

《例示化合物60の合成》

15 4,4' ージョードビフェニル6.87g、rーカルボリン6.00gをN, Nージメチルアセトアミド50m1中に添加した混合液に、銅粉4.5g、炭酸カリウム7.36gを加え、15時間加熱還流した。放冷後水クロロホルムを加え、不溶物を濾去した。有機層を分離し、水、飽和食塩水で洗浄した後、減圧下に濃縮し、得られた残渣をシリカゲルクロマトグラフィーに付した後、20ジクロロメタン/シクロヘキサン中で結晶化させ、例示化合物60の無色結晶4.3gを得た。

例示化合物60の構造は、「H-NMRスペクトル及び質量分析スペクトルに よって確認した。例示化合物60の物性データ、スペクトルデータを下記に示 す。

 $MS(FAB)m/z:487(M^{+1})$ 

 $^{1}H-NMR(400MHz, CDC1_{3}): \delta/ppm$  7. 4-7. 4(m, 4H), 7. 4-7. 5(m, 4H), 7. 7-7. 8(m, 4H) 7. 9-8. 50(m, 4H), 8. 25(d, J=7. 8Hz, 2H), 8. 57(d, J=5. 6Hz, 2H), 9. 42(s, 1H)

《例示化合物144の合成》

15

10

酢酸パラジウム 0. 16g、トリーtertーブチルホスフィン 0. 58gを無水トルエン10m1に溶解し、水素化ホウ素ナトリウム 25mgを添加し、室温で10分間攪拌した後、δーカルボリン 2.00g、中間体 a 3.20g、ナトリウムーtertーブトキシド 1.37gを無水キシレン 50m1中に分20散し、窒素雰囲気下、還流温度にて10時間撹拌した。放冷後クロロホルムと水を加えて有機層を分離し、有機層を、水、飽和食塩水で洗浄した後減圧下に濃縮し、得られた残渣を酢酸から再結晶して例示化合物 144の無色結晶 1.5gを得た。

例示化合物 144 の構造は、 $^1H-NMR$  スペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物 144 のスペクトルデータは以下の通りである。 MS(FAB) m/z:  $647(M^{+1})$ 

CI 
$$+ H_2N$$
  $+ H_2N$   $+ H_2N$ 

4, 4' -ジクロロ-3, 3' -ビピリジル0. 85g、ジアミンb0. 5
20 9g、ジベンジリデンアセトンパラジウム44mg、イミダゾリウム塩36mg、ナトリウム-tert-ブトキシド1. 09gをジメトキシエタン5mlに添加し、80℃で24時間加温攪拌した。放冷後クロロホルムと水を加えて有機層を分離し、有機層を、水、飽和食塩水で洗浄した後減圧下に濃縮し、得

られた残渣を酢酸エチルから再結晶して例示化合物143の無色結晶0.3gを得た。

例示化合物143の構造は、「H-NMRスペクトル及び質量分析スペクトルによって確認した。例示化合物143のスペクトルデータを下記に示す。

- $5 \text{ MS (FAB) m/z} 639 (M^{+1})$
- <sup>1</sup>H-NMR (400MHz, CDC1<sub>3</sub>): δ/ppm 7. 46 (d, J=5. 7Hz, 4H)、7. 6-7. 7 (m, 4H)、7. 8-7. 9 (m, 4H)、8. 67 (d, J=5. 7Hz, 4H)、9. 51 (S, 4H)
  《例示化合物 145の合成》
- 10 例示化合物 1 4 3 の合成において、4, 4' ージクロロー3, 3' ービピリジルの一方のピリジン環をベンゼンに変更した、3 ー (2 ークロロフェニル) ー4 ークロロピリジンを用いた以外は同様にして、例示化合物 1 4 5 を合成した。

例示化合物145の構造は、「H-NMRスペクトル及び質量分析スペクトル 15 によって確認した。例示化合物145のスペクトルデータを下記に示す。

MS (FAB) m/z 637 ( $M^{+1}$ )

<sup>1</sup>H-NMR(400MHz, CDCl<sub>3</sub>) δ/ppm 7.3-7.4(m, 2H), 7.6-7.7(m, 4H), 7.7-7.8(m, 4H) 7.8-7. 9(m, 4H), 8.06(d, J=5.3Hz, 2H), 8.23(d, J= 207.8Hz, 2H), 8.56(d, J=5.3Hz, 2H), 8.96(S, 2H)

尚、上記の合成例以外に、これらの化合物のアザカルバゾール環やその類緑体は、J. Chem. Soc., Perkin Trans. 1, 1505-1

510(1999)、Pol. J. Chem., 54, 1585(1980)、(Tetrahedron Lett. 41(2000), 481-484)に記載される合成法に従って合成することができる。合成されたアザカルバゾール環やその類縁体と、芳香環、複素環、アルキル基などの、コア、連結基への導入は、ウルマンカップリング、Pd触媒を用いたカップリング、スズキカップリングなど公知の方法を用いることができる。

本発明に係る化合物は、分子量が400以上であることが好ましく、450以上であることがより好ましく、更に好ましくは600以上であり、特に好ましくは分子量が800以上である。これにより、ガラス転移温度を上昇させ熱10安定性が向上し、より一層長寿命化をさせることができる。

本発明に係る化合物は、後述する有機EL素子の構成層の構成成分として用いられるが、本発明では、本発明の有機EL素子の構成層の中で、発光層または電子輸送層(電子輸送層中で正孔阻止材料として用いられる)に含有されることが好ましく、好ましくは発光層であり、特に好ましくは、発光層のホスト15 化合物として用いられることが好ましい。但し、有機EL素子の種々の物性コントロールの観点から必要に応じて、本発明に係る化合物は、有機EL素子のその他の構成層に用いてもよい。

本発明に係る化合物は有機EL素子用材料(バックライト、フラットパネルディスプレイ、照明光源、表示素子、電子写真用光源、記録光源、露光光源、20 読み取り光源、標識、看板、インテリア、光通信デバイスなど)等の用途に用いられるが、その他の用途しては、有機半導体レーザー用材料(記録光源、露光光源、読み取り光源光通信デバイス、電子写真用光源など)、電子写真用感光体材料、有機TFT素子用材料(有機メモリ素子、有機演算素子、有機スイッ

チング素子)、有機波長変換素子用材料、光電変換素子用材料(太陽電池、光センサーなど)などの広い分野に利用可能である。

次に、本発明の有機EL素子の構成層について詳細に説明する。

本発明において、有機EL素子の層構成の好ましい具体例を以下に示すが、 5 本発明はこれらに限定されない。

- ( i ) 陽極/発光層/電子輸送層/陰極
- (ii) 陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極
- (iii)陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極
- (iv)陽極/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極バッファー
  10 層/陰極
  - (v)陽極/陽極バッファー層/正孔輸送層/発光層/正孔阻止層/電子輸送層/陰極バッファー層/陰極

#### 《陽極》

有機EL素子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 e V以上)金属、15 合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては A u 等の金属、C u I、インジウムチンオキシド(ITO)、S n O 2、Z n O 等の導電性透明材料が挙げられる。また、IDIXO(In 2O3-ZnO)等非晶質で透明導電膜を作製可能な材料を用いてもよい。陽極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により、薄膜を形成させ、フォトリソグラフィー法で所望の形状のパターンを形成してもよく、あるいはパターン精度をあまり必要としない場合は(100μm以上程度)、上記電極物質の蒸着やスパッタリング時に所望の形状のマスクを介してパターンを形成してもよい。この陽極より発光を取り出す

場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、陽極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。更に膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1000nm、好ましくは10nm~200nmの範囲で選ばれる。《陰極》

- 一方、陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属(電子注入性金 属と称する)、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするも のが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリ ウムーカリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、マ グネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム/ 10 インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム(A12〇3)混合物、イ ンジウム、リチウム/アルミニウム混合物、希土類金属等が挙げられる。これ らの中で、電子注入性及び酸化等に対する耐久性の点から、電子注入性金属と これより仕事関数の値が大きく安定な金属である第二金属との混合物、例えば マグネシウム/銀混合物、マグネシウム/アルミニウム混合物、マグネシウム 15 /インジウム混合物、アルミニウム/酸化アルミニウム (Al2O3) 混合物、 リチウム/アルミニウム混合物、アルミニウム等が好適である。陰極は、これ らの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法により薄膜を形成させることに より、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega$ / $\Box$ 以 下が好ましく、膜厚は通常10 n m~5 μ m、好ましくは50~200 n mの 20 範囲で選ばれる。なお、発光した光を透過させるため、有機EL素子の陽極ま たは陰極のいずれか一方が、透明または半透明であれば発光輝度が向上し好都 合である。
  - また、陰極に上記金属を1~20 n mの膜厚で作製した後に、陽極の説明で

挙げた導電性透明材料をその上に作製することで、透明または半透明の陰極を 作製することができ、これを応用することで陽極と陰極の両方が透過性を有す る素子を作製することができる。

次に、本発明の有機EL素子の構成層として用いられる、注入層、阻止層、 5 電子輸送層等について説明する。

《注入層:電子注入層、正孔注入層》

注入層は必要に応じて設け、電子注入層と正孔注入層があり、上記のごとく 陽極と発光層または正孔輸送層の間、及び、陰極と発光層または電子輸送層と の間に存在させてもよい。

- 10 注入層とは、駆動電圧低下や発光輝度向上のために電極と有機層間に設けられる層のことで、「有機EL素子とその工業化最前線(1998年11月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の第2編第2章「電極材料」(123~166頁)に詳細に記載されており、正孔注入層(陽極バッファー層)と電子注入層(陰極バッファー層)とがある。
- 15 陽極バッファー層(正孔注入層)は、特開平9-45479号公報、同9-260062号公報、同8-288069号公報等にもその詳細が記載されており、具体例として、銅フタロシアニンに代表されるフタロシアニンバッファー層、酸化バナジウムに代表される酸化物バッファー層、アモルファスカーボンバッファー層、ポリアニリン(エメラルディン)やポリチオフェン等の導電20 性高分子を用いた高分子バッファー層等が挙げられる。

陰極バッファー層(電子注入層)は、特開平6-325871号公報、同9-17574号公報、同10-74586号公報等にもその詳細が記載されており、具体的にはストロンチウムやアルミニウム等に代表される金属バッファ

ー層、フッ化リチウムに代表されるアルカリ金属化合物バッファー層、フッ化マグネシウムに代表されるアルカリ土類金属化合物バッファー層、酸化アルミニウムに代表される酸化物バッファー層等が挙げられる。上記バッファー層(注入層)はごく薄い膜であることが望ましく、素材にもよるが、その膜厚は 0.

 $51nm\sim5\mu$ mの範囲が好ましい。

《阻止層:正孔阻止層、電子阻止層》

阻止層は、上記のごとく、有機化合物薄膜の基本構成層の他に必要に応じて設けられるものである。例えば特開平11-204258号公報、同11-204359号公報、及び「有機EL素子とその工業化最前線(1998年110月30日エヌ・ティー・エス社発行)」の237頁等に記載されている正孔阻止(ホールブロック)層がある。

正孔阻止層とは広い意味では電子輸送層であり、電子を輸送する機能を有しつつ正孔を輸送する能力が著しく小さい正孔阻止材料からなり、電子を輸送しつつ正孔を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができ 3 る。

本発明の有機EL素子の正孔阻止層は、発光層に隣接して設けられている。本発明では、正孔阻止層の正孔阻止材料として前述した本発明に係る化合物を含有させることが好ましい。これにより、より一層発光効率の高い有機EL素子とすることができる。更に、より一層長寿命化させることができる。

20 一方、電子阻止層とは広い意味では正孔輸送層であり、正孔を輸送する機能 を有しつつ電子を輸送する能力が著しく小さい材料からなり、正孔を輸送しつ つ電子を阻止することで電子と正孔の再結合確率を向上させることができる。 《発光層》 本発明に係る発光層は、電極または電子輸送層、正孔輸送層から注入されて くる電子及び正孔が再結合して発光する層であり、発光する部分は発光層の層 内であっても発光層と隣接層との界面であってもよい。

(ホスト化合物)

- 本発明の有機EL素子の発光層には、以下に示す、ホスト化合物とリン光性化合物(リン光発光性化合物ともいう)が含有されることが好ましく、本発明においては、ホスト化合物として前述した本発明に係る化合物を用いることが好ましい。これにより、より一層発光効率を高くすることができる。また、ホスト化合物として、上記の本発明に係る化合物以外の化合物を含有してもよい。ここで、本発明においてホスト化合物とは、発光層に含有される化合物のうちで室温(25℃)においてリン光発光のリン光量子収率が、0.01未満の化合物と定義される。
  - 更に、公知のホスト化合物を複数種併用して用いてもよい。ホスト化合物を複数種もちいることで、電荷の移動を調整することが可能であり、有機EL素 15 子を高効率化することができる。また、リン光性化合物を複数種用いることで、異なる発光を混ぜることが可能となり、これにより任意の発光色を得ることができる。リン光性化合物の種類、ドープ量を調整することで白色発光が可能であり、照明、バックライトへの応用もできる。

これらの公知のホスト化合物としては、正孔輸送能、電子輸送能を有しつつ、 20 かつ、発光の長波長化を防ぎ、なおかつ高Tg(ガラス転移温度)である化合 物が好ましい。

公知のホスト化合物の具体例としては、以下の文献に記載されている化合物 が挙げられる。 特開2001-257076号公報、同2002-308855号公報、同2001-313179号公報、同2002-319491号公報、同2001-357977号公報、同2002-334786号公報、同2002-8860号公報、同2002-334787号公報、同2002-15871号5公報、同2002-334788号公報、同2002-43056号公報、同2002-334789号公報、同2002-75645号公報、同2002-3438579号公報、同2002-105445号公報、同2002-343568号公報、同2002-141173号公報、同2002-352957号公報、同2002-231453号公報、同2002-363227号公10報、同2002-231453号公報、同2003-3165号公報、同2002-255934号公報、同2003-27048号公報、同2002-255934号公報、同2002-260861号公報、同2002-280183号公報、同2002-280183号公報、同2002-280183号公報、同2002-280183号公報、同2002-280183号公報、同2002-299060号公報、同2002-305084号公報、

また、発光層は、ホスト化合物として更に蛍光極大波長を有するホスト化合物を含有していてもよい。この場合、他のホスト化合物とリン光性化合物から蛍光性化合物へのエネルギー移動で、有機EL素子としての電界発光は蛍光極大波長を有する他のホスト化合物からの発光も得られる。蛍光極大波長を有す20るホスト化合物として好ましいのは、溶液状態で蛍光量子収率が高いものである。ここで、蛍光量子収率は10%以上、特に30%以上が好ましい。具体的な蛍光極大波長を有するホスト化合物としては、クマリン系色素、ピラン系色素、シアニン系色素、クロコニウム系色素、スクアリウム系色素、オキソベン

ツアントラセン系色素、フルオレセイン系色素、ローダミン系色素、ピリリウム系色素、ペリレン系色素、スチルベン系色素、ポリチオフェン系色素等が挙げられる。蛍光量子収率は、前記第4版実験化学講座7の分光IIの362頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定することができる。

5 (リン光性化合物(リン光発光性化合物))

発光層に使用される材料(以下、発光材料という)としては、上記のホスト 化合物を含有すると同時に、リン光性化合物を含有することが好ましい。これ により、より発光効率の高い有機EL素子とすることができる。

本発明に係るリン光性化合物は、励起三重項からの発光が観測される化合物 10 であり、室温(25°)にてリン光発光する化合物であり、リン光量子収率が、25°において0.01以上の化合物である。リン光量子収率は好ましくは0.1以上である。

上記リン光量子収率は、第4版実験化学講座7の分光IIの398頁(1992年版、丸善)に記載の方法により測定できる。溶液中でのリン光量子収率は15種々の溶媒を用いて測定できるが、本発明に用いられるリン光性化合物は、任意の溶媒の何れかにおいて上記リン光量子収率が達成されればよい。

リン光性化合物の発光は、原理としては2種挙げられ、一つはキャリアが輸送されるホスト化合物上でキャリアの再結合が起こってホスト化合物の励起状態が生成し、このエネルギーをリン光性化合物に移動させることでリン光性化20 合物からの発光を得るというエネルギー移動型、もう一つはリン光性化合物がキャリアトラップとなり、リン光性化合物上でキャリアの再結合が起こりリン光性化合物からの発光が得られるというキャリアトラップ型であるが、いずれの場合においても、リン光性化合物の励起状態のエネルギーはホスト化合物の

励起状態のエネルギーよりも低いことが条件である。

リン光性化合物は、有機EL素子の発光層に使用される公知のものの中から 適宜選択して用いることができる。

本発明で用いられるリン光性化合物としては、好ましくは元素の周期律表で 8 族の金属を含有する錯体系化合物であり、更に好ましくは、イリジウム化合物、オスミウム化合物、または白金化合物(白金錯体系化合物)、希土類錯体で あり、中でも最も好ましいのはイリジウム化合物である。

以下に、本発明で用いられるリン光性化合物の具体例を示すが、これらに限定されるものではない。これらの化合物は、例えば、Inorg. Chem. 10 4 0 巻、1704~1711に記載の方法等により合成できる。

Ir-6
$$\begin{bmatrix} C_4H_9(t) \\ C_4H_9(t) \end{bmatrix}$$

ir-13

10

5

Pt-2

Pt-3

$$C_{2}H_{5}$$
 $C_{2}H_{5}$ 
 $C_{2}H_{5}$ 
 $C_{2}H_{5}$ 
 $C_{2}H_{5}$ 
 $C_{2}H_{5}$ 
 $C_{2}H_{5}$ 
 $C_{2}H_{5}$ 

15

Pd-2

Pd-3

$$Rh-3$$

10

(CF<sub>3</sub>CF<sub>2</sub>CF<sub>2</sub>COO<sup>-</sup>)<sub>2</sub>

D-1

D-2

15

D-4

本発明においては、リン光性化合物のリン光発光極大波長としては特に制限されるものではなく、原理的には、中心金属、配位子、配位子の置換基等を選択することで得られる発光波長を変化させることができるが、リン光性化合物のリン光発光波長が380~480nmにリン光発光の極大波長を有することが好ましい。このような青色リン光発光の有機EL素子や、白色リン光発光の有機EL素子で、より一層発光効率を高めることができる。

本発明の有機EL素子や本発明に係る化合物の発光する色は、「新編色彩科学ハンドブック」(日本色彩学会編、東京大学出版会、1985)の108頁の図4.16において、分光放射輝度計CS-1000(ミノルタ製)で測定した15 結果をCIE色度座標に当てはめたときの色で決定される。

発光層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、 LB法、インクジェット法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することが できる。発光層としての膜厚は特に制限はないが、通常は5 nm~5 μm、好 ましくは5 nm~200 nmの範囲で選ばれる。この発光層は、これらのリン 20 光性化合物やホスト化合物が1種または2種以上からなる一層構造であっても よいし、あるいは、同一組成または異種組成の複数層からなる積層構造であっ てもよい。

#### 《正孔輸送層》

正孔輸送層とは正孔を輸送する機能を有する正孔輸送材料からなり、広い意味で正孔注入層、電子阻止層も正孔輸送層に含まれる。正孔輸送層は単層または複数層設けることができる。

正孔輸送材料としては、正孔の注入または輸送、電子の障壁性のいずれかを5 有するものであり、有機物、無機物のいずれであってもよい。例えばトリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、ロスチルベン誘導体、シラザン誘導体、アニリン系共重合体、また、導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマー等が挙げられる。

正孔輸送材料としては、上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

15 芳香族第三級アミン化合物及びスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N', N' ーテトラフェニルー4, 4' ージアミノフェニル;N, N' ージフェニルーN, N' ービス (3-メチルフェニル)ー[1, 1' ービフェニル]ー4, 4' ージアミン (TPD); 2, 2ービス (4-ジーpートリルアミノフェニル)プロパン;1, 1ービス (4-ジーp-トリルアミノフェニル)20 シクロヘキサン;N, N, N', N' ーテトラーp-トリルアミノフェニル)ー4ーフェニル;1, 1ービス (4-ジーp-トリルアミノフェニル)ー4ーフェニルシクロヘキサン;ビス (4-ジメチルアミノー2-メチルフェニル)フェニルメタン;ビス (4-ジーp-トリルアミノフェニル)フェニルメタン;ビス (4-ジーp-トリルアミノフェニル)フェニルメタン

; N, N' ージフェニルーN, N' ージ (4ーメトキシフェニル) ー4, 4'
ージアミノビフェニル; N, N, N', N' ーテトラフェニルー4, 4' ージアミノジフェニルエーテル; 4, 4'ービス (ジフェニルアミノ) クオードリフェニル; N, N, Nートリ (pートリル) アミン; 4ー (ジーpートリルア5 ミノ) ー4'ー [4ー(ジーpートリルアミノ) スチリル] スチルベン; 4ー N, Nージフェニルアミノー (2ージフェニルビニル) ベンゼン; 3ーメトキシー4'ーN, Nージフェニルアミノスチルベンゼン; Nーフェニルカルバゾール、更には、米国特許第5,061,569号明細書に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有するもの、例えば4,4'ービス [Nー(1ーナ10 フチル) ーNーフェニルアミノ] ビフェニル (NPD)、特開平4ー308688号公報に記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4"ートリス [Nー(3ーメチルフェニル)ーNーフェニルアミノ] トリフェニルアミン (MTDATA)等が挙げられる。

更に、これらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の 15 主鎖とした高分子材料を用いることもできる。また、p型-Si,p型-Si C等の無機化合物も正孔注入材料、正孔輸送材料として使用することができる。 正孔輸送層は、上記正孔輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、 薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層の膜厚については特 20 に制限はないが、通常は5nm~5μm程度、好ましくは5~200nmである。この正孔輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよい。

《電子輸送層》

電子輸送層とは電子を輸送する機能を有する材料からなり、広い意味で電子 注入層、正孔阻止層も電子輸送層に含まれる。電子輸送層は単層または複数層 設けることができる。

従来、単層の電子輸送層、及び複数層とする場合は発光層に対して陰極側に 5 隣接する電子輸送層に用いられる電子輸送材料(正孔阻止材料を兼ねる)としては、陰極より注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができ、例えば、ニトロ置換フルオレン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、 アントラキノジメタン及びアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体等が挙げられる。更に、上記オキサジアゾール誘導体において、オキサジアゾール環の酸素原子を硫黄原子に置換したチアジアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有するキノキサリン誘導体も、電子輸送材料として用いることができる。

15 更にこれらの材料を高分子鎖に導入した、またはこれらの材料を高分子の主 鎖とした高分子材料を用いることもできる。

また、8ーキノリノール誘導体の金属錯体、例えばトリス(8ーキノリノール)アルミニウム(Alq)、トリス(5、7ージクロロー8ーキノリノール)アルミニウム、トリス(5、7ージブロモー8ーキノリノール)アルミニウム、20トリス(2ーメチルー8ーキノリノール)アルミニウム、トリス(5ーメチルー8ーキノリノール)アルミニウム、ビス(8ーキノリノール)亜鉛(Znq)等、及びこれらの金属錯体の中心金属がIn、Mg、Cu、Ca、Sn、GaまたはPbに置き替わった金属錯体も、電子輸送材料として用いることができ

る。その他、メタルフリー若しくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基やスルホン酸基等で置換されているものも、電子輸送材料として好ましく用いることができる。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子輸送材料として用いることができるし、正孔注入層、 5 正孔輸送層と同様に、n型-Si、n型-SiC等の無機半導体も電子輸送材料として用いることができる。

電子輸送層は、上記電子輸送材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、 キャスト法、インクジェット法を含む印刷法、LB法等の公知の方法により、 薄膜化することにより形成することができる。電子輸送層の膜厚については特 10 に制限はないが、通常は $5 \text{ nm} \sim 5 \mu \text{ m程度}$ 、好ましくは $5 \sim 200 \text{ nm}$ である。電子輸送層は、上記材料の1種または2種以上からなる一層構造であって もよい。

#### 《基体》

本発明の有機EL素子は、基体上に形成されているのが好ましい。

15 本発明の有機EL素子に用いることのできる基体(以下、基板、基材、支持体等ともいう)としては、ガラス、プラスチック等の種類には特に限定はなく、また、透明のものであれば特に制限はないが、好ましく用いられる基板としては例えばガラス、石英、光透過性樹脂フィルムを挙げることができる。特に好ましい基体は、有機EL素子にフレキシブル性を与えることが可能な樹脂フィ

樹脂フィルムとしては、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリエーテルスルホン(PES)、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポ

リアリレート、ポリイミド、ポリカーボネート(PC)、セルローストリアセテート(TAC)、セルロースアセテートプロピオネート(CAP)等からなるフィルム等が挙げられる。樹脂フィルムの表面には、無機物、有機物の被膜または、その両者のハイブリッド被膜が形成されていてもよい。

5 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の発光の室温における外部取り 出し効率は1%以上であることが好ましく、より好ましくは5%以上である。 ここに、外部取り出し量子効率(%)=有機EL素子外部に発光した光子数/ 有機EL素子に流した電子数×100である。

また、カラーフィルター等の色相改良フィルター等を併用しても、有機EL 10 素子からの発光色を蛍光体を用いて多色へ変換する色変換フィルターを併用してもよい。色変換フィルターを用いる場合においては、有機EL素子の発光の λ m a x は 4 8 0 n m以下が好ましい。

《有機EL素子の作製方法》

本発明の有機EL素子の作製方法の一例として、陽極/正孔注入層/正孔輸 15 送層/発光層/電子輸送層/電子注入層/陰極からなる有機EL素子の作製法 について説明する。

まず適当な基体上に、所望の電極物質、例えば陽極用物質からなる薄膜を、 1 μ m以下、好ましくは10~200 n mの膜厚になるように、蒸着やスパッ タリング等の方法により形成させ、陽極を作製する。次に、この上に有機EL 20 素子材料である正孔注入層、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、電子注入層、 正孔阻止層の有機化合物薄膜を形成させる。

この有機化合物薄膜の薄膜化の方法としては、前記の如く蒸着法、ウェットプロセス(例えば、スピンコート法、キャスト法、インクジェット法、印刷法)

これらの層を形成後、その上に陰極用物質からなる薄膜を、1 μ m 以下好ましくは50~200 n m の範囲の膜厚になるように、例えば蒸着やスパッタリング等の方法により形成させ、陰極を設けることにより、所望の有機E L 素子が得られる。この有機E L 素子の作製は、一回の真空引きで一貫して正孔注入層から陰極まで作製するのが好ましいが、途中で取り出して異なる製膜法を施してもかまわない。その際、作業を乾燥不活性ガス雰囲気下で行う等の配慮が必要となる。

15 多色の本発明の表示装置は、発光層形成時のみシャドーマスクを設け、他層は共通であるのでシャドーマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で膜を形成できる。

発光層のみパターニングを行う場合、その方法に限定はないが、好ましくは 20 蒸着法、インクジェット法、印刷法である。蒸着法を用いる場合においてはシャドーマスクを用いたパターニングが好ましい。

また作製順序を逆にして、陰極、電子注入層、電子輸送層、発光層、正孔輸送層、正孔注入層、陽極の順に作製することも可能である。このようにして得

られた多色の表示装置に、直流電圧を印加する場合には、陽極を+、陰極を-の極性として電圧2~40 V程度を印加すると、発光が観測できる。また交流 電圧を印加してもよい。なお、印加する交流の波形は任意でよい。

本発明の表示装置は、表示デバイス、ディスプレー、各種発光光源として用 5 いることができる。表示デバイス、ディスプレーにおいて、青、赤、緑発光の 3 種の有機 E L 素子を用いることにより、フルカラーの表示が可能となる。

表示デバイス、ディスプレーとしてはテレビ、パソコン、モバイル機器、AV機器、文字放送表示、自動車内の情報表示等が挙げられる。特に静止画像や動画像を再生する表示装置として使用してもよく、動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリックス(パッシブマトリックス)方式でもアクティブマトリックス方式でもどちらでもよい。

照明装置としては、家庭用照明、車内照明、時計や液晶用のバックライト、 看板広告、信号機、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機 の光源、光センサの光源等が挙げられるがこれに限定するものではない。

15 また、本発明の有機 E L 素子に共振器構造を持たせた有機 E L 素子として用いてもよい。

このような共振器構造を有した有機EL素子の使用目的としては、光記憶媒体の光源、電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサの光源等が挙げられるが、これらに限定されない。また、レーザ発振をさせることにより、20 上記用途に使用してもよい。

本発明の有機EL材料は、照明装置として、実質白色の発光を生じる有機E L素子に適用できる。複数の発光材料により複数の発光色を同時に発光させて 混色により白色発光を得る。複数の発光色の組み合わせとしては、青色、緑色、 青色の3原色の3つの発光極大波長を含有させたものでも良いし、青色と黄色、 青緑と橙色等の補色の関係を利用した2つの発光極大波長を含有したものでも 良い。

また、複数の発光色を得るための発光材料の組み合わせは、複数のリン光ま たは蛍光で発光する材料を、複数組み合わせたもの、蛍光またはリン光で発光 する発光材料と、発光材料からの光を励起光として発光する色素材料との組み 合わせたもののいずれでも良いが、本発明に係わる白色有機エレクトロルミネッセンス素子においては、発光ドーパントを複数組み合わせ混合するだけでよい。発光層もしくは正孔輸送層或いは電子輸送層等の形成時のみマスクを設け、10 マスクにより塗り分けるなど単純に配置するだけでよく、他層は共通であるのでマスク等のパターニングは不要であり、一面に蒸着法、キャスト法、スピンコート法、インクジェット法、印刷法等で例えば電極膜を形成でき、生産性も向上する。この方法によれば、複数色の発光素子をアレー状に並列配置した白色有機EL装置と異なり、素子自体が発光白色である。

- 15 発光層に用いる発光材料としては特に制限はなく、例えば、液晶表示素子におけるバックライトであれば、CF(カラーフィルター)特性に対応した波長範囲に適合するように、オルトメタル化錯体(Ir錯体、Pt錯体など)、また公知の発光材料の中から任意のものを選択して組み合わせて白色化すれば良い。
- 20 このように、本発明に係る白色発光有機EL素子は、前記表示デバイス、ディスプレーに加えて、各種発光光源、照明装置として、家庭用照明、車内照明、また露光光源のような一種のランプとして、また液晶表示装置のバックライト等、表示装置にも有用に用いられる。

その他、時計等のバックライト、看板広告、信号機、光記憶媒体等の光源、 電子写真複写機の光源、光通信処理機の光源、光センサーの光源等、更には表 示装置を必要とする一般の家庭用電気器具等広い範囲の用途が挙げられる。

### 《表示装置》

5 本発明の有機EL素子は、照明用や露光光源のような1種のランプとして使用してもよいし、画像を投影するタイプのプロジェクション装置や、静止画像や動画像を直接視認するタイプの表示装置(ディスプレイ)として使用してもよい。動画再生用の表示装置として使用する場合の駆動方式は単純マトリクス(パッシブマトリクス)方式でもアクティブマトリクス方式でもどちらでもよ10い。または、異なる発光色を有する本発明の有機EL素子を3種以上使用することにより、フルカラー表示装置を作製することが可能である。または、一色の発光色、例えば、白色発光をカラーフィルターを用いてBGRにし、フルカラー化することも可能である。更に、有機ELの発光色を色変換フィルターを用いて他色に変換しフルカラー化することも可能であるが、その場合、有機E

本発明の有機EL素子から構成される表示装置の一例を図面に基づいて以下に説明する。

第1図は、有機EL素子から構成される表示装置の一例を示した模式図である。有機EL素子の発光により画像情報の表示を行う、例えば、携帯電話等の20 ディスプレイの模式図である。

ディスプレイ1は、複数の画素を有する表示部A、画像情報に基づいて表示部Aの画像走査を行う制御部B等からなる。

制御部Bは、表示部Aと電気的に接続され、複数の画素それぞれに外部から

の画像情報に基づいて走査信号と画像データ信号を送り、走査信号により走査 線毎の画素が画像データ信号に応じて順次発光して画像走査を行って画像情報 を表示部Aに表示する。

第2図は、表示部Aの模式図である。

5 表示部Aは基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を含む配線部と、複数の画素3等とを有する。表示部Aの主要な部材の説明を以下に行う。第2図においては、画素3の発光した光が、白矢印方向(下方向)へ取り出される場合を示している。

配線部の走査線5及び複数のデータ線6は、それぞれ導電材料からなり、走 10 査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交する位置で画素3に接続してい る (詳細は図示せず)。

画素3は、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。発光の色が赤領域の画素、緑領域の画素、青領域の画素を、適宜、同一基板上に並置すること 15 によって、フルカラー表示が可能となる。

次に、画素の発光プロセスを説明する。

第3図は、画素の模式図である。

画素は、有機EL素子10、スイッチングトランジスタ11、駆動トランジスタ12、コンデンサ13等を備えている。複数の画素に有機EL素子10と20して、赤色、緑色、青色発光の有機EL素子を用い、これらを同一基板上に並置することでフルカラー表示を行うことができる。

第3図において、制御部Bからデータ線6を介してスイッチングトランジスタ11のドレインに画像データ信号が印加される。そして、制御部Bから走査

線5を介してスイッチングトランジスタ11のゲートに走査信号が印加されると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオンし、ドレインに印加された画像データ信号がコンデンサ13と駆動トランジスタ12のゲートに伝達される。

- 5 画像データ信号の伝達により、コンデンサ13が画像データ信号の電位に応じて充電されるとともに、駆動トランジスタ12の駆動がオンする。駆動トランジスタ12は、ドレインが電源ライン7に接続され、ソースが有機EL素子10の電極に接続されており、ゲートに印加された画像データ信号の電位に応じて電源ライン7から有機EL素子10に電流が供給される。
- 10 制御部Bの順次走査により走査信号が次の走査線5に移ると、スイッチングトランジスタ11の駆動がオフする。しかし、スイッチングトランジスタ11 の駆動がオフしてもコンデンサ13は充電された画像データ信号の電位を保持するので、駆動トランジスタ12の駆動はオン状態が保たれて、次の走査信号の印加が行われるまで有機EL素子10の発光が継続する。順次走査により次15 に走査信号が印加されたとき、走査信号に同期した次の画像データ信号の電位に応じて駆動トランジスタ12が駆動して有機EL素子10が発光する。

すなわち、有機EL素子10の発光は、複数の画素それぞれの有機EL素子 10に対して、アクティブ素子であるスイッチングトランジスタ11と駆動ト ランジスタ12を設けて、複数の画素3それぞれの有機EL素子10の発光を 20 行っている。このような発光方法をアクティブマトリクス方式と呼んでいる。

ここで、有機EL素子10の発光は、複数の階調電位を持つ多値の画像データ信号による複数の階調の発光でもよいし、2値の画像データ信号による所定の発光量のオン、オフでもよい。

また、コンデンサ13の電位の保持は、次の走査信号の印加まで継続して保 持してもよいし、次の走査信号が印加される直前に放電させてもよい。

本発明においては、上述したアクティブマトリクス方式に限らず、走査信号 が走査されたときのみデータ信号に応じて有機EL素子を発光させるパッシブ 5マトリクス方式の発光駆動でもよい。

第4図は、パッシブマトリクス方式による表示装置の模式図である。第4図において、複数の走査線5と複数の画像データ線6が画素3を挟んで対向して格子状に設けられている。

順次走査により走査線5の走査信号が印加されたとき、印加された走査線5 10 に接続している画素3が画像データ信号に応じて発光する。パッシブマトリク ス方式では画素3にアクティブ素子がなく、製造コストの低減が計れる。

次に、実施例により本発明を説明するが、本発明の実施態様はこれらに限定 されるものではない。

# 実施例1

15 《有機EL素子1-1~1-23の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製NA45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオ20ゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにα-NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにホスト化合物として例示化合物9を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにバソキュプロイン(B

CP)を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIr-12を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlqsを200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

次いで、真空槽を4×10<sup>-4</sup>Paまで減圧した後、α-NPDの入った前記 5 加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で透明支持基板に蒸着 し第1正孔輸送層を設けた。更に、例示化合物9とIr-12の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、それぞれ蒸着速度0.2 nm/秒、0.012 nm/秒で前記第1正孔輸送層上に共蒸着して発光層を設けた。なお、蒸着時の 基板温度は室温であった。更に、BCPの入った前記加熱ボートに通電して加 10 熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で前記発光層の上に蒸着して膜厚10 nmの正 孔阻止層を設けた。その上に、更に、A1qsの入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 nm/秒で前記正孔阻止層の上に蒸着して更に膜厚 40nmの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続きフッ化リチウム O. 5 n m 及びアルミニウム 1 1 O n m を蒸着して 15 陰極を形成し、有機 E L 素子 1 - 1 を作製した。

有機EL素子1-1の作製において、発光層のホスト化合物として用いている例示化合物9を表1に示す各化合物に置き換えてホスト化合物とした以外は有機EL素子1-1と同じ方法で有機EL素子1-2~1-21を作製した。上記で使用した化合物の構造を以下に示す。

109

《有機EL素子1-1~1-21の評価》

以下のようにして作製した有機EL素子1-1~1-21の評価を行った。 [輝度]

10 分光放射輝度計CS-1000(コニカミノルタセンシング社製)で測定した輝度を用いて輝度( $cd/m^2$ )を求めた。

[外部取りだし量子効率]

作製した有機EL素子について、23℃、乾燥窒素ガス雰囲気下で2.5 m A/c m²定電流を印加した時の外部取り出し量子効率(%)を測定した。なお 15 測定には同様に分光放射輝度計CS-1000(コニカミノルタセンシング社 製)を用いた。

下表に記載の輝度、外部取りだし量子効率の測定結果は、有機EL素子1-15の測定値を100とした時の相対値で表した。

以上により得られた結果を、下表に示す。

20



有	f機EL素子 番号	ホスト化合物	輝度	外部取りだし	備考
-	1-1	9	220	221	* 本発明
5	1 – 2	1 0	180	179	本発明
٠.,	1 - 3	1 3	2 1 5	217	本発明
	1 - 4	1 6	160	165	本発明
	· 1 – 5	2 8	205	202	本発明
	1 – 6	3 3	155	153	本発明
10	1 – 7	3 9	2 1 5	2 1 5	本発明
	1 – 8	5 0	2 1 3	2 1 2	本発明
	1 – 9	5 3	189	190	本発明
	1 – 1 0	5 6	212	2 1 0	本発明
	1-11	6 4	217	2 1 7	本発明
15	1 - 12	7 1	201	200	本発明
	1-13	7 9	170	172	本発明
	$1 - 1 \ 4$	9 0	180	179	本発明
	1 - 15	СВР	100	100	比較例
	1 - 16	1 0 5	199	. 201	本発明
20	1 - 17	1 2 2	2 1 3	2 1 3	本発明
	1-18	1 2 3	196	198	本発明
	1-19	131	192	191	本発明
	1-20	1 3 2	190	191	本発明



1-21 140

198

198

本発明

上記表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL 素子は、輝度が高く、かつ外部取り出し量子効率に非常に優れていることが分 5 かった。

#### 実施例2

《有機EL素子2-1~2-20の作製》

陽極として100mm×100mm×1.1mmのガラス基板上にITO(インジウムチンオキシド)を100nm製膜した基板(NHテクノグラス社製N10A45)にパターニングを行った後、このITO透明電極を設けた透明支持基板をイソプロピルアルコールで超音波洗浄し、乾燥窒素ガスで乾燥し、UVオゾン洗浄を5分間行なった。この透明支持基板を市販の真空蒸着装置の基板ホルダーに固定し、一方、モリブデン製抵抗加熱ボートにα−NPDを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにCBPを200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにITAILは材料として例示化合物9を200mg入れ、別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIT-1を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIT-1を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにIT-1を100mg入れ、更に別のモリブデン製抵抗加熱ボートにAlqsを200mg入れ、真空蒸着装置に取付けた。

次いで、真空槽を4×10<sup>-4</sup>Paまで減圧した後、α-NPDの入った前記 20 加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度 0. 1 n m/秒で透明支持基板に蒸着 し第一正孔輸送層を設けた。更に、CBPとIr-1の入った前記加熱ボート に通電して加熱し、それぞれ蒸着速度 0. 2 n m/秒、0. 0 1 2 n m/秒で 前記正孔輸送層上に共蒸着して発光層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室

温であった。更に、例示化合物9の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 n m / 秒で前記発光層の上に蒸着して膜厚10 n mの正孔阻止層を設けた。その上に、更に、A 1 q 3の入った前記加熱ボートに通電して加熱し、蒸着速度0.1 n m / 秒で前記正孔阻止層の上に蒸着して更に膜厚40 n 5 mの電子輸送層を設けた。なお、蒸着時の基板温度は室温であった。

引き続きフッ化リチウム 0.5 n m及びアルミニウム 1 1 0 n mを蒸着して 陰極を形成し、有機 E L素子 2 - 1 を作製した。

有機EL素子2-1の作製において、正孔阻止材料として用いている例示化合物9を下表に示す化合物に置き換えた以外は有機EL素子2-1と同じ方法10で2-1~2-20を作製した。

《有機EL素子2-1~2-20の評価》

実施例1と同様にして有機EL素子2-1~2-20の輝度、外部取り出し 量子効率の評価を行った。更に下記に示す測定法に従って、寿命の評価を行った。

# 15 〔寿命〕

- $2.5\,\mathrm{m\,A/c\,m^2}$ の一定電流で駆動したときに、輝度が発光開始直後の輝度(初期輝度)の半分に低下するのに要した時間を測定し、これを半減寿命時間( $\tau\,0.\,5$ )として寿命の指標とした。なお測定には分光放射輝度計 $C\,S\,-\,1\,0\,0\,0\,$ (コニカミノルタセンシング社製)を用いた。
- 20 以上により得られた結果を、下表に示す。なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率、寿命の測定結果は、有機EL素子2-12を100とした時の相対値で表した。



有	√機EL素子 番号	正孔阻止材料	輝度	外部取りだし 量子効率	寿命	備考
-	2-1	9	120	120	3 2 5	本発明
5	$\frac{1}{2} - 2$	1 1	1 3 0	1 2 9	5 3 4	本発明
٠.,	2-3	1 5	125	123	330	本発明
	2 – 4	1 6	120	1 2 2	3 5 7	本発明
	2 – 5	2 3	105	103	296	本発明
	2 - 6	4 0	122	120	440	本発明
10	2 - 7	5 0	1 2 5	126	600	本発明
	2 – 3	5 3	110	112	320	本発明
	2-9	5 6	124	122	764	本発明
	2-10	7 9	106	105	250	本発明
	2-11	8 8	103	102	305	本発明
15	2-12	ВСР	1 0 0	100	100	比較例
	$2 - 1 \ 3$	7 3	118	118	621	本発明
	$2 - 1 \ 4$	7 4	1 1 4	115	832	本発明
	2 - 15	1 0 5	120	120	537	本発明
	2-16	1 1 9	1 1 5	114	945	本発明
20	2-1.7	1 2 3	112	111	584	本発明
	2-18	131	1 1 0	110	482	本発明
	2 - 19	1 3 2	113	112	561	本発明
	2 - 20	140	121	1 2 3	556	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素 子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ長寿命化が達成されて いることが分かった。

#### 実施例3

5 《有機EL素子3-1~3-8の作製》

実施例1に記載の有機EL素子1-1の作製において、発光層のホスト化合物を、下表に記載の化合物に変更し、Ir-12をIr-11に変更し、更にBCPをB-A1 qに変更した以外は同様にして、有機EL素子3-1~3-8を作製した。

#### 10 **B**-**Alq**

15 《有機EL素子3-1~3-8の評価》

実施例1と同様にして有機EL素子3-1~3-8の輝度、外部取り出し量子効率の評価を行った。更に、下記に示す測定法に従って、保存性の評価を行った。

## [保存性]

20 各有機EL素子を、85℃で24時間保存した後、保存前後における2.5 m A / c m²の定電流駆動での各輝度を測定し、各輝度比を下式に従って求め、これを保存性の尺度とした。

保存性(%)=保存後の輝度(2.5 m A / c m²) / 保存前の輝度(2.5

 $mA/cm^2) \times 100$ 

以上により得られた結果を、下表に示す。なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率の測定結果は、有機EL素子3-6を100とした時の相対値で表した。

5

٠.,	有機EL	ホスト化合物	保存性	備考
	素子番号		(%)	·
•				
	3 - 1	180	9 0	本発明
10	3 - 2	175	8 5	本発明
	3 – 3	8 2	88	本発明
	3 - 4	184	8 2	本発明
	3 – 5	183	8 6	本発明
	3 – 6	СВР	48	比較例
15	3 – 7	186	5 3	本発明
	3 – 8	187	6 4	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ保存性に優れているこ20とが分かった。その中でも、一般式(1-12)に係る化合物で、かつ分子量が450以上である化合物が、特に優れていることが分かる。

## 実施例4

《有機EL素子4-1~4-8の作製》

実施例1に記載の有機EL素子1-1の作製において、発光層のホスト化合物を、下表に記載の化合物に変更し、Ir-12をIr-11に変更し、更にBCPをB-A1qに変更した以外は同様にして、有機EL素子4-1~4-8を作製した。

5 《有機EL素子4-1~4-8の評価》

実施例1と同様にして有機EL素子4-1~4-8の輝度、外部取り出し量子効率の評価を行った。更に、下記に示す測定法に従って、50℃駆動寿命の評価を行った。

[50℃駆動寿命]

10 各有機EL素子を、50℃の一定条件で、初期輝度1000cd/m²を与える電流で定電流駆動して、初期輝度の1/2(500cd/m²)になる時間を求め、これを50℃駆動寿命の尺度とした。なお、50℃駆動寿命は、比較の有機EL素子4-6を100とした時の相対値で表示した。

以上により得られた結果を、下表に示す。なお、下表に記載の輝度、外部取 15 り出し量子効率の測定結果は、有機EL素子4-6を100とした時の相対値 で表した。

	有機EL	ホスト化合物	50°C 駆動寿命	備考
	素子番号		13223	
	4-1	185	730	本発明
5	4 - 2	7 4	685	本発明
٠.,	4 - 3	1 3 9	725	本発明
	4 – 4	1 4 4	755	本発明
	4 – 5	8 9	780	本発明
	4 - 6	СВР	100	比較例
10	4 - 7	186	132	本発明
	4-8	187	253	本発明

## 実施例5

《有機EL素子5-1~5-8の作製》

実施例1に記載の有機EL素子1-1の作製において、発光層のホスト化合
 20 物を、下表に記載の化合物に変更し、Ir-12をIr-1に変更し、更にB
 CPをB-A1qに変更した以外は同様にして、有機EL素子5-1~5-8
 を作製した。

《有機EL素子5-1~5-8の評価》

実施例1と同様にして有機EL素子5-1~5-8の輝度、外部取り出し量子効率の評価を行った。更に、下記に示す測定法に従って、初期寿命の評価を行った。

## 〔初期寿命〕

5 各有機EL素子を、初期輝度1000cd/m²を与える電流で定電流駆動して、輝度が90%(900cd/m²)になる時間を求め、これを初期寿命の尺度とした。なお、初期寿命は、比較の有機EL素子5-6を100とした時の相対値で表示した。

以上により得られた結果を、下表に示す。なお、下表に記載の輝度、外部取 10 り出し量子効率の測定結果は、有機EL素子5-6を100とした時の相対値 で表した。

	有機EL	ホスト化合物	初期寿命	備考
	素子番号			·
15				
	5 – 1	118	5 5 5	本発明
	5 – 2	123	485	本発明
	5 – 3	7 3	5 5 0	本発明
	5 – 4	4 8	490	本発明
20	5 – 5	130	5 3 5	本発明
	5 – 6	СВР	100	比較例
	5 – 7	188	126	本発明
	5 – 8	187	198	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ初期寿命に優れていることが分かった。その中でも、一般式(1-11)に係る化合物が、特に優れていることが分かる。

## 5 実施例 6

《有機EL素子6-1~6-8の作製》

実施例1に記載の有機EL素子1-1の作製において、発光層のホスト化合物を、下表に記載の化合物に変更し、Ir-12をIr-11に変更し、更にBCPをB-A1 qに変更した以外は同様にして、有機EL素子6-1~6-810を作製した。

《有機EL素子6-1~6-8の評価》

実施例1と同様にして有機EL素子6-1~6-8の輝度、外部取り出し量子効率の評価を行った。更に、下記に示す測定法に従って、駆動電圧の評価を行った。

# 15 〔駆動電圧〕

駆動電圧とは、2.5 m A / c m<sup>2</sup>で駆動した時の電圧で、比較の有機E L 素子6-6の駆動電圧(V)からの差を求めた。

駆動電圧(V)=有機EL素子6-6の駆動電圧(V)-本発明の有機EL 素子の駆動電圧(V)

20 以上により得られた結果を、下表に示す。なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率の測定結果は、有機EL素子6-6を100とした時の相対値で表した。

	有機EL	ホスト化合物	駆動電圧	備考
	素子番号		( V )	
•				
	6 – 1	1 4	1. 3	本発明
5	6 - 2	1 6	1. 4	本発明
٠.	6 – 3	5 2	1. 5	本発明
	6 – 4	8 9	1. 2	本発明
	6 <b>–</b> 5	4 8	1. 2	本発明
	6 – 6	СВР	0	比較例
10	6 - 7	186	0.8	本発明
10	6 – 8	187	0.8	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ駆動電圧に優れている ことが分かった。その中でも、一般式(1-1)から(1-4)に係る化合物が、特に優れていることが分かる。

# 実施例7

《有機EL素子7-1~7-8の作製》

実施例2に記載の有機EL素子2-12の作製において、発光層のホスト化20合物(CBP)を、例示化合物130に変更し、更に正孔阻止層のBCPを下表に記載の正孔阻止材料に変更した以外は同様にして、有機EL素子7-1~7-8を作製した。

《有機EL素子7-1~7-8の評価》

実施例3と同様にして有機EL素子7-1~7-8の輝度、外部取り出し量子効率及び保存性の評価を行い、得られた結果を下表に示す。なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率の測定結果は、有機EL素子7-6を100とした時の相対値で表した。

5

٠.	有機EL	正孔阻止	保存性	備考
	素子番号	材料	(%)	
-				
	7 – 1	180	9 2	本発明
10	7 – 2	175	88	本発明
	7 – 3	8 2	89	本発明
	7 - 4	184	8 6	本発明
	7 – 5	183	9 0	本発明
	7 – 6	B-A1q	6 7	比較例
15	7 - 7	186	6 7	本発明
	7 – 8	187	7 6	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ保存性に優れているこ20とが分かった。その中でも、一般式(1-12)に係る化合物で、かつ分子量が450以上である化合物が、特に優れていることが分かる。

# 実施例8

《有機EL素子8-1~8-8の作製》

実施例2に記載の有機EL素子2-12の作製において、発光層のホスト化合物(CBP)を、例示化合物130に変更し、更に正孔阻止層のBCPを下表に記載の正孔阻止材料に変更した以外は同様にして、有機EL素子8-1~8-8を作製した。

# 5 《有機EL素子8-1~8-8の評価》

実施例4と同様にして有機EL素子8-1~8-8の輝度、外部取り出し量子効率、及び50℃駆動寿命の評価を行い、得られた結果を下表に示す。

なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率及び50℃駆動寿命の測定 結果は、有機EL素子8-6を100とした時の相対値で表した。

10

	有機EL	正孔阻止	50℃	備考
	素子番号	化合物	駆動寿命	
•	8-1	185	420	本発明
15	8-2	7 4	385	本発明
	8 – 3	1 3 9	390	本発明
	8 - 4	144	365	本発明
	8 – 5	8 9	440	本発明
	8 – 6	B-A 1 q	100	比較例
20	8 - 7	186	121	本発明
	8 – 8	187	173	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素

子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ50  $^{\circ}$  駆動寿命に優れていることが分かった。その中でも、一般式(1-13)に係る化合物で、かつ分子量が450以上である化合物が、特に優れていることが分かる。

# 実施例9

5 《有機EL素子9-1~9-8の作製》

実施例2に記載の有機EL素子2-12の作製において、発光層のホスト化合物 (CBP)を、例示化合物130に変更し、更に正孔阻止層のBCPを下表に記載の正孔阻止材料に変更した以外は同様にして、有機EL素子9-1~9-8を作製した。

10 《有機EL素子9-1~9-8の評価》

実施例5と同様にして有機EL素子9-1~9-8の輝度、外部取り出し量子効率及び初期寿命の評価を行い、得られた結果を下表に示す。

なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率及び初期寿命の測定結果は、 有機EL素子9-6を100とした時の相対値で表した。

	有機EL 素子番号	正孔阻止化合物	初期寿命	備考 
-	9 – 1	118	3 2 1	本発明
5	9 – 2	123	298	本発明
	9 – 3	7 3	350	本発明
	9 – 4	48	310	本発明
	9 – 5	1 3 0	350	本発明
	9 – 6	B-A 1 q	100	比較例
10	9 – 7	188	112	本発明
	9 – 8	187	141	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ初期寿命に優れている ことが分かった。その中でも、一般式(1-11)に係る化合物が、特に優れていることが分かる。

### 実施例10

《有機EL素子10-1~10-8の作製》

実施例2に記載の有機EL素子2-12の作製において、発光層のホスト化20合物(CBP)を、例示化合物130に変更し、更に正孔阻止層のBCPを下表に記載の正孔阻止材料に変更した以外は同様にして、有機EL素子10-1~10-8を作製した。

《有機EL素子10-1~10-8の評価》

実施例6と同様にして有機EL素子10-1~10-8の輝度、外部取り出 し量子効率及び駆動電圧の評価を行い、得られた結果を下表に示す。

なお、下表に記載の輝度、外部取り出し量子効率の測定結果は、有機EL素子 子9-6を100とした時の相対値で表した。また、駆動電圧は有機EL素子 510-6との差で求めた。

有機EL 素子番号	正孔阻止化合物	駆動電圧 (V)	備考
10 1 0 - 1	1 4	0. 9	本発明
10-2	16	1. 0	本発明
10-3	5 2	1. 0	本発明
10-4	8 9	0.8	本発明
10-5	48	0.9	本発明
15 1 0 - 6	B-A1q	0	比較例
10-7	186	0.4	本発明
10-8	187	0.4	本発明

上表に記載の結果より明らかなように、比較に比べて、本発明の有機EL素 20 子は、輝度が高く、外部取り出し量子効率に優れ、かつ駆動電圧に優れている ことが分かった。その中でも、一般式(1-1)から(1-4)に係る化合物 が、特に優れていることが分かる。

## 実施例11

実施例1で作製した本発明の有機EL素子1-1と、実施例2で作製した本 発明の有機EL素子2-7と、本発明の有機EL素子2-7のリン光性化合物 を例示化合物 I r - 9 に置き換えた以外は同様にして作製した赤色発光有機 E L素子を同一基板上に並置し、第1図に示すアクティブマトリクス方式フルカ 5 ラー表示装置を作製した。第2図には作製したフルカラー表示装置の表示部A の模式図のみを示した。即ち同一基板上に、複数の走査線5及びデータ線6を 含む配線部と、並置した複数の画素3(発光の色が赤領域の画素、緑領域の画 素、青領域の画素等)とを有し、配線部の走査線5及び複数のデータ線6はそ れぞれ導電材料からなり、走査線5とデータ線6は格子状に直交して、直交す 10 る位置で画素 3 に接続している (詳細は図示せず)。前記複数の画素 3 は、それ ぞれの発光色に対応した有機EL素子、アクティブ素子であるスイッチングト ランジスタと駆動トランジスタそれぞれが設けられたアクティブマトリクス方 式で駆動されており、走査線5から走査信号が印加されると、データ線6から 画像データ信号を受け取り、受け取った画像データに応じて発光する。このよ 15 うに各赤、緑、青の画素を適宜、並置することによって、フルカラー表示が可 能となる。

フルカラー表示装置を駆動することにより、外部とりだし量子効率が高く耐 久性の良好な、鮮明なフルカラー動画表示が得られた。

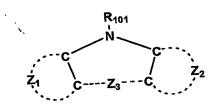
# 20 産業上の利用可能性

以上のように、本発明により、発光効率が高く、長寿命となる有機エレクト ロルミネッセンス素子及び表示装置を提供することができる。

# 請求の範囲

1. 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1)で表される化合物を含有する 5 ことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(1)



10

〔式中、Z₁は置換基を有していてもよい芳香族複素環を表し、Z₂は置換基を有していてもよい芳香族複素環、または芳香族炭化水素環を表し、Z₃は2価の車結基または単なる結合手を表す。R₁₀₁は水素原子または置換基を表す。〕

- 2. 前記一般式(1)で表される化合物のZıが、6員環であることを特徴と 15 する請求の範囲第1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 3. 前記一般式(1)で表される化合物のZ₂が、6員環であることを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 子。
    4. 前記一般式(1)で表される化合物のZsが、結合手であることを特徴と
    20 する請求の範囲第1項乃至第3項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミ
    ネッセンス素子。
    - 5. 前記一般式(1)で表される化合物が、分子量450以上であることを 特徴とする請求の範囲第1項乃至第4項のいずれか1項に記載の有機エレクト

ロルミネッセンス素子。

6. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-1)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 5 一般式(1-1)

- 10 [式中、R 501~R 507は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]
  - 7. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-2)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(1-2)

[式中、R 511~R 517は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

20 8. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-3)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1-3)

5

[式中、R521~R527は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

9. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-4)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10 一般式(1-4)

[式中、R531~R537は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

15 10. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-5)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(1-5)

20

[式中、R 541~R 548は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

11. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-6)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(1-6)

[式中、R551~R558は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

10 12. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-7)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(1-7)

[式中、R561~R567は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

13. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-8)で表さ 20 れることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(1-8)

5

[式中、R571~R577は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。]

14. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-9)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

10 一般式(1-9)

15 〔式中、Rは、水素原子または置換基を表す。また、複数のRは、各々同一で もよく、異なっていてもよい。〕

15. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(1-10)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

20 一般式(1-10)

〔式中、Rは、水素原子または置換基を表す。また、複数のRは、各々同一で もよく、異なっていてもよい。〕

16. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(2-1)~(2-8)のいずれかで表される基を少なくとも一つ有することを特徴とする請求 5の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

Ř<sub>575</sub>

Ř<sub>565</sub>

R<sub>566</sub>

[一般式(2-1)において、R<sub>502</sub>~R<sub>507</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-2)において、R<sub>512</sub>~R<sub>517</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-3)において、R<sub>522</sub>~R<sub>527</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。一般式(2-4)において、R<sub>532</sub>~5 R<sub>537</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-5)において、R<sub>542</sub>~R<sub>548</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-6)において、R<sub>552</sub>~R<sub>558</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-7)において、R<sub>562</sub>~R<sub>567</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-7)において、R<sub>562</sub>~R<sub>567</sub>は、各々独立に、水素原子または置換基を表し、一般式(2-8)において、R<sub>572</sub>~R<sub>577</sub>は、各々独立に、水素

17. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(3)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(3)

〔式中、R $_{601}$ ~R $_{606}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、R $_{60}$  $_{1}$ ~R $_{606}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基20 から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

18. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(4)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(4)

- 5 〔式中、 $R_{611} \sim R_{620}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{61} \sim R_{620}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕
- 19. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(5)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機工10レクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(5)

- 15 〔式中、 $R_{621} \sim R_{623}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{62}$  $_1 \sim R_{623}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕
- 20. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(6)で表される ことを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機工 20 レクトロルミネッセンス素子。

### 一般式(6)

5

〔式中、 $R_{631}\sim R_{645}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{63}$   $10_1\sim R_{645}$  の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

21. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(7)で表される ことを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エ レクトロルミネッセンス素子。

#### 15 一般式(7)

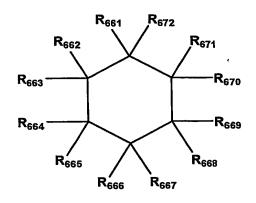
20

〔式中、 $R_{651}\sim R_{656}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{65}\sim R_{656}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。naは $0\sim 5$ の整数を表し、nbは

1~6の整数を表すが、naとnbの和は6である。]

22. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(8)で表される ことを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エ レクトロルミネッセンス素子。

### 5 一般式(8)

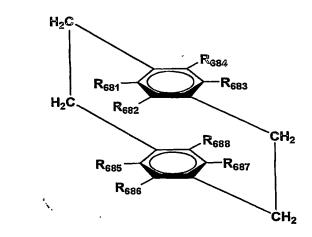


10

〔式中、R $_{661}$ ~R $_{672}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、R $_{66}$  $_1$ ~R $_{672}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

15 23. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(9)で表される ことを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エ レクトロルミネッセンス素子。 一般式(9)

5



〔式中、 $R_{681} \sim R_{688}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $R_{68}$ 10  $_1 \sim R_{688}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)~(2-4)で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

24. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(10)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 15 一般式(10)

〔式中、 $R_{691}\sim R_{700}$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表すが、 $L_1$ は 20 2価の連結基を表す。 $R_{691}\sim R_{700}$ の少なくとも一つは前記一般式(2-1)  $\sim (2-4)$  で表される基から選ばれる少なくとも一つの基を表す。〕

25. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(11)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機

エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(11)

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。 n 、 mは、 10 各々  $1\sim 2$  の整数を表し、 k 、 1 は、各々  $3\sim 4$  の整数を表す。但し、 n+k =5 、且つ、 1+m=5 である。〕

26. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(12)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 15 —般式(12)

20

$$\begin{pmatrix} \begin{pmatrix} & & & \\$$

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。n、mは、各々1~2の整数を表し、k、1は、各々3~4の整数を表す。但し、n+k

=5、且つ、1+m=5である。〕

27. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(13)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 5 一般式(13)

10

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。n、mは、各々1~2の整数を表し、k、1は、各々3~4の整数を表す。但し、n+k = 5、且つ、1+m=5である。〕

15 28. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(14)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(14)

$$(R_1)_k \qquad (R_2)$$

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。n、mは、各々1~2の整数を表し、k、lは、各々3~4の整数を表す。但し、n+k=5、且つ、l+m=5である。〕

29. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(15)で表され 5ることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機 エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(15)

$$\begin{pmatrix}
z_1 \\
 & z_2 \\
 & R_2
\end{pmatrix}_{n}$$

$$\begin{pmatrix}
z_1 \\
 & Z_2
\end{pmatrix}_{n}$$

$$\begin{pmatrix}
z_1 \\
 & Z_4
\end{pmatrix}_{m}$$

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は、各々独立に、水素原子または置換基を表す。 n、mは、 15 各々1~2の整数を表し、k、1 は、各々3~4の整数を表す。但し、n+k =5、且つ、1+m=5である。 $Z_1$ 、 $Z_2$ 、 $Z_3$ 、 $Z_4$ は、各々窒素原子を少な くとも一つ含む 6 員の芳香族複素環を表す。〕

30. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(16)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機20 エレクトロルミネッセンス素子。

一般式(16)

〔式中、o、pは、各々1~3の整数を表し、Arı、Ar₂は、各々アリーレン基または2価の芳香族複素環基を表す。Zı、Z₂は、各々窒素原子を少なく
 10 とも一つ含む6員の芳香族複素環を表し、Lは、2価の連結基を表す。〕

31. 前記一般式(1)で表される化合物が、下記一般式(17)で表されることを特徴とする請求の範囲第1項乃至第5項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 一般式(17)

15

5

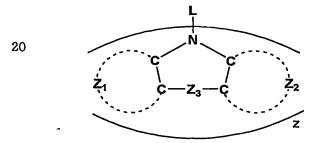
20

〔式中、o、pは、各々1~3の整数を表し、A r  $_1$ 、A r  $_2$ は、各々2 価のアリーレン基または2 価の芳香族複素環基を表す。Z  $_1$ 、Z  $_2$ 、Z  $_3$ 、Z  $_4$  は、各々窒素原子を少なくとも一つ含む6 員の芳香族複素環を表し、L は、2 価の連結

#### 基を表す。」

- 32. 前記燐光性発光層が、前記一般式(1)で表される化合物を含有する ことを特徴とする請求の範囲第1項乃至第31項のいずれか1項に記載の有機 / エレクトロルミネッセンス素子。
- 5 33. 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第1項乃至第32項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 34. 青色に発光することを特徴とする請求の範囲第1項乃至第33項のい 10 ずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 35. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第1項乃至第33項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 36. 請求の範囲第1項乃至第35項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
- 15 3 7. 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1-11)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 一般式(1-11)

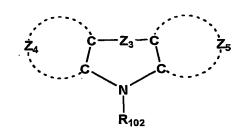


【式中、Z₁は置換基を有していてもよい芳香族複素環を表し、Z₂は置換基を有していてもよい芳香族複素環、または芳香族炭化水素環を表し、Z₃は2価の連結基または単なる結合手を表す。Lは2価の連結基を表す。Lで連結される2つの基はそれぞれ同じでも異なっていても良い。〕

- 5 3 8. 前記一般式(1-11)で表される化合物のZ<sub>1</sub>が、6 員環であることを特徴とする請求の範囲第37項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 39. 前記一般式(1-11)で表される化合物の 22が、6 員環であることを特徴とする請求の範囲第37項または第38項に記載の有機エレクトロルミ10ネッセンス素子。
  - 40. 前記一般式(1-11)で表される化合物のZ<sub>3</sub>が、結合手であることを特徴とする請求の範囲第37項乃至第39項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 41. 前記一般式(1-11)で表される化合物が、分子量450以上であ 15ることを特徴とする請求の範囲第37項乃至第40項のいずれか1項に記載の 有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 42. 前記燐光性発光層が、前記一般式(1-11)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第37項乃至第41項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 20 43. 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1-11)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第37項乃至第42項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 44. 青色に発光することを特徴とする請求の範囲第37項乃至第43項の いずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 45. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第37項乃至第43項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 5 4 6. 請求の範囲第 3 7 項乃至第 4 5 項のいずれか 1 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
  - 47. 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1-12)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 10 一般式(1-12)



- 15 [式中、R<sub>102</sub>は置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していても良いシクロアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、または置換基を有していても良い複素環基を表す。 $Z_4$ 、 $Z_5$ は、各々独立に、 $S\sim7$ 員の含窒素複素環構造を形成するのに必要な原子群を表す。 $Z_3$ は2価の連結基または単なる結合手を表す。]
- 20 4 8. 前記一般式(1-12)で表される化合物の Z<sub>8</sub>が、結合手であることを特徴とする請求の範囲第47項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 49. 前記一般式(1-12)で表される化合物が、分子量450以上であ

ることを特徴とする請求の範囲第47項または第48項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- 50. 前記燐光性発光層が、前記一般式(1-12)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第47項乃至第49項のいずれか1項に記 5載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 51. 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1-12)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第47項乃至第50項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 10 5 2. 青色に発光することを特徴とする請求の範囲第47項乃至第51項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 53. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第47項乃至第51項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 54. 請求の範囲第47項乃至第53項のいずれか1項に記載の有機エレク 15トロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。
  - 55. 一対の電極間に、少なくとも燐光性発光層を含む構成層を有し、前記構成層のうち少なくとも一層が、下記一般式(1-13)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

### 一般式(1-13)

20

〔式中、R10sは置換基を有していてもよいアルキル基、置換基を有していても 良いシクロアルキル基、置換基を有していてもよいアリール基、または置換基 を有していても良い複素環基を表す。R104は水素原子または置換基を表す。Z 6、Z7は各々5~7員の環構造を形成するのに必要な原子群を表す。〕

- 5 5 6. 前記一般式(1-13)で表される化合物の Z 6 が、6 員環であることを特徴とする請求の範囲第5 5 項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 57. 前記一般式(1-13)で表される化合物のZ<sub>7</sub>が、6員環であることを特徴とする請求の範囲第55項または第56項に記載の有機エレクトロルミ10ネッセンス素子。
  - 58. 前記一般式(1-13)で表される化合物が、分子量450以上であることを特徴とする請求の範囲第55項乃至第57項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 59. 前記燐光性発光層が、前記一般式(1-13)で表される化合物を含 15 有することを特徴とする請求の範囲第55項乃至第58項のいずれか1項に記 載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- 60. 前記構成層の少なくとも1層が正孔阻止層であって、前記正孔阻止層が前記一般式(1-13)で表される化合物を含有することを特徴とする請求の範囲第55項乃至第59項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッ20センス素子。
  - 61. 青色に発光することを特徴とする請求の範囲第55項乃至第60項の いずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
  - 62. 白色に発光することを特徴とする請求の範囲第55項乃至第60項の





147

いずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

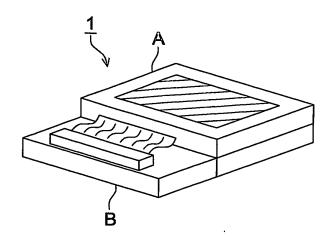
63. 請求の範囲第55項乃至第62項のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子を備えたことを特徴とする表示装置。



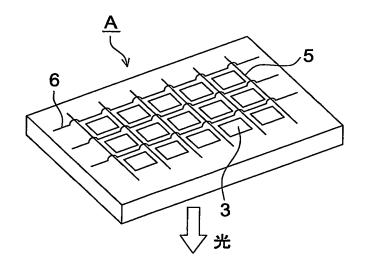


1/3

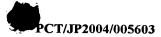
# 第1図



# 第2図

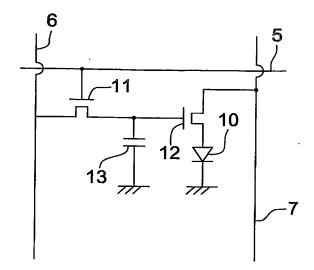




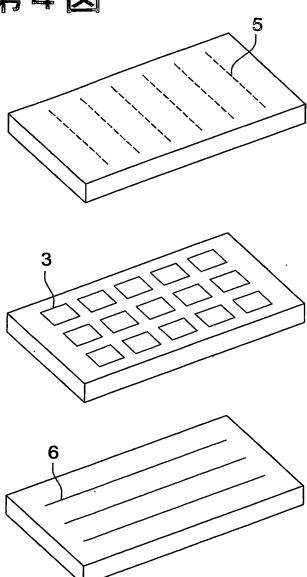


2/3

## 第3図







### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

		.   FC1/UP2	2004/005605				
	CATION OF SUBJECT MATTER H05B33/22						
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC							
B. FIELDS SEARCHED							
Minimum docum	nentation searched (classification system followed by cl H05B33/00-28, C09K11/06	assification symbols)					
Dogumentation	searched other than minimum documentation to the exte		o fielde goerebod				
Jitsuyo	Shinan Koho 1926-1996 To	oroku Jitsuyo Shinan Koho tsuyo Shinan Toroku Koho	1994–2004 1996–2004				
	pase consulted during the international search (name of N), JICST FILE (JOIS)	data base and, where practicable, search to	erms used)				
	NTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	·	<b>-</b>				
Category*	Citation of document, with indication, where ap	opropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.				
A	JP 2001-160488 A (Konica Cor 12 June, 2001 (12.06.01), Full text; all drawings (Family: none)	p.),	1-63				
Y	JP 2003-109767 A (Toray Indu 11 April, 2003 (11.04.03), Par. Nos. [0017] to [0020] (Family: none)	stries, Inc.),	5				
Y A	JP 02-108058 A (Canon Inc.), 19 April, 1990 (19.04.90), Claims (Family: none)		1-5,55-63 6-54				
× Further do	ocuments are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.					
* Special categories of cited documents:  "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" carlier application or patent but published on or after the international filing date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is		"T" later document published after the integrated date and not in conflict with the applic the principle or theory underlying the i	ation but cited to understand				
		"X" document of particular relevance; the considered novel or cannot be consisten when the document is taken alone	dered to involve an inventive				
cited to esta special reaso	ablish the publication date of another citation or other on (as specified) aftering to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"Y" document of particular relevance; the considered to involve an inventive combined with one or more other such	step when the document is documents, such combination				
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		being obvious to a person skilled in the "&" document member of the same patent					
Date of the actual completion of the international search 12 August, 2004 (12.08.04)		Date of mailing of the international sear 07 September, 2004					
	ng address of the ISA/ se Patent Office	Authorized officer	<u> </u>				
Facsimile No.		Telephone No.					
Form PCT/ISA/21	0 (second sheet) (January 2004)						

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (January 2004)

International application No.
PCT/JP2004/005603

Category*  Y 5- A 2: P: (1) Y J. 30 C. (1) P,A J.	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant  4-11736 A (Ricoh Co., Ltd.),  9 January, 1979 (29.01.79),  age 2, upper left column  Family: none)  P 63-293550 A (Canon Inc.),  0 November, 1988 (30.11.88),  laims  Family: none)  P 2003-335754 A (Fuji Photo Film Co., Legan Research Parameters, 2003 (28.11.03),  laim 1; Par. Nos. [0033] to [0051]  Family: none)		Relevant to claim No.  1-5,55-63 6-54  1-5,14  17-20,24-31
Y 50 A 22 Pa (1) Y J1 30 C1 (1)	4-11736 A (Ricoh Co., Ltd.), 9 January, 1979 (29.01.79), age 2, upper left column Family: none) P 63-293550 A (Canon Inc.), 0 November, 1988 (30.11.88), laims Family: none) P 2003-335754 A (Fuji Photo Film Co., L 8 November, 2003 (28.11.03), laim 1; Par. Nos. [0033] to [0051] Family: none)		1-5,55-63 6-54 1-5,14
A 2: Pr (: : : : : : : : : : : : : : : : : : :	9 January, 1979 (29.01.79), age 2, upper left column Family: none)  P 63-293550 A (Canon Inc.), 0 November, 1988 (30.11.88), laims Family: none)  P 2003-335754 A (Fuji Photo Film Co., Legan Service	td.),	6-54 1-5,14
23 C. (1) P,A J1	<pre>0 November, 1988 (30.11.88), laims Family: none) P 2003-335754 A (Fuji Photo Film Co., L 8 November, 2003 (28.11.03), laim 1; Par. Nos. [0033] to [0051] Family: none)</pre>	td.),	·
P,A J	8 November, 2003 (28.11.03), laim 1; Par. Nos. [0033] to [0051] Family: none)	td.),	17-20,24-31
C:			
2 C	O 2004/053019 A1 (Idemitsu Kosan Co., La 4 June, 2004 (24.06.04), laims 1, 10 to 16; chemical formula 4 to		1-5,8,10,14, 16-18,26-27, 29-32,34-42,
	xamples 1 to 6 Family: none)		44-50,52-54 6-7,9,11-13, 15,19-24,25, 28,33,43,51, 55-63
			·
		:	



国際出願番号 PCT/JP2004/005603

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		•		
Int. Cl <sup>7</sup> H05B33/22				
B. 調査を行った分野				
調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))				
Int. C1' H05B33/00-28, C09K11	/06			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの				
日本国実用新案公報 1926-1996年				
日本国公開実用新案公報 1971-2004年				
日本国登録実用新案公報 1994-2004年				
日本国実用新案登録公報 1996-2004年				
国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)			
CAS (STN) ,JICSTファイル (JOIS)				
C. 関連すると認められる文献	<u> </u>			
引用文献の		関連する		
カテゴリー* 引用文献名 及び一部の箇所が関連する。	ときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号		
A JP 2001-160488 A	(コニカ株式会社)2001.	1-63		
06.12,全文全図(ファミリー)	なし)			
Y JP 2003-109767 A	(東レ株式会社) 2003.0	· 5		
4. 11,段落【0017】~【0	020】 (ファミリーなし)	•		
	,			
Y JP 02-108058 A (キー	ヤノン株式会社) 1990.0	1-5, 55-63		
A 4.19,特許請求の範囲(ファミ)	リーなし)	6-54		
X   C欄の続きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献			
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す	「T」国際出願日又は優先日後に公表	された文献であって		
<b>もの</b>	出願と矛盾するものではなく、多			
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日	の理解のために引用するもの			
以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行	「X」特に関連のある文献であって、			
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する	の新規性又は進歩性がないと考え 「Y」特に関連のある文献であって、			
文献(理由を付す)	上の文献との、当業者にとって			
「〇」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献	よって進歩性がないと考えられる			
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献				
国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日				
国際調査を完了した日 国際調査報告の発送日 12.08.2004 07.9.2004				
国際細木機即のタサルでもマル		2V 9314		
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 特許庁審査官(権限のある職員) 単村 利光				
郵便番号100-8915	,			
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	内線 3271			



### 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/005603

C (続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*		関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP 54-11736 A (株式会社リコー) 1979.01. 29,公報第2頁左上欄(ファミリーなし)	1-5, 55-63 6-54
Y	JP 63-293550 A (キヤノン株式会社) 1988. 1 1.30, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-5, 14
P, A	JP 2003-335754 A (富士写真フイルム株式会社) 2003.11.28,請求項1及び段落【0033】~【005 1】 (ファミリーなし)	17-20, 24-31
E, X	WO 2004/053019 A1 (出光與産株式会社) 2004.06.24,請求項1,請求項10乃至16,【化4】 ~【化13】,実施例1乃至6 (ファミリーなし)	1-5, 8, 10, 14, 16-18, 26-27, 29-32, 34-42, 44-50, 52-54
E, A		6-7, 9, 11-13, 15, 19-24, 25, 28, 33, 43, 51, 55-63
1		
·		